ISOTOPIEVERSCHIEBUNG UND HYPERFEINSTRUKTUR VON STABILEN UND RADIOAKTIVEN XENONISOTOPEN

Inaugural-Dissertation
zur
Erlangung der Doktorwürde
des
Fachbereichs Physik
der Freien Universität Berlin

vorgelegt von

FRANZ SCHNEIDER
aus Hilpoltstein

~~1981~~
1985

Isotopieverschiebung und Hyperfeinstruktur von stabilen und radioaktiven Xenonisotopen

Inaugural-Dissertation
zur
Erlangung der Doktorwürde
des
Fachbereichs Physik
der Freien Universität Berlin

vorgelegt von

Franz Schneider
aus Hilpoltstein

1984

1. Referent: Prof. Dr. E. Matthias
2. Referent: Prof. Dr. K. H. Lindenberger

Tag der letzten mündlichen Prüfung: 20.2.85

INHALTSVERZEICHNIS SEITE

1.	**EINLEITUNG**	1
2.	**WARUM ISV AN XENONISOTOPEN?**	9
3.	**THEORIE DER HYPERFEINSTRUKTUR (HFS) UND DER ISOTOPIEVERSCHIEBUNG (ISV)**	14
3.1	ELEMENTARE THEORIE DER HYPERFEINSTRUKTUR	15
3.2	ALLGEMEINE THEORIE DER HYPERFEINSTRUKTUR	18
3.3	HYPERFEINANOMALIE	23
3.4	ISOTOPIEVERSCHIEBUNG	24
3.4.1	Allgemeine Grundlagen	24
3.4.2	Masseneffekte	26
3.4.3	Volumeneffekt	29
3.4.4	Aufteilung der ISV in Massen- und Volumeneffekt	31
3.4.5	Bestimmung der Kernladungsradiusänderungen aus dem VE	33
3.4.6	Trennung des sphärischen und des Deformationsanteils des VE	34

4.	**EXPERIMENTELLE VERFAHREN**	40
4.1	LASERSPEKTROMETER	41
4.1.1	Farbstofflaser	42
4.1.2	Frequenzstabilisierung von Farbstofflasern	45
4.1.3	Grobeinstellung der Wellenlänge	47
4.1.4	Frequenzeichung und computergesteuerte Durchstimmung des Farbstofflasers	49
4.2	SPEKTROSKOPISCHE METHODE	52
4.2.1	Sättigungsspektroskopie	55
4.2.2	Maßnahmen zur Verbesserung des Signal/Rausch-Verhältnisses	61
4.2.2.1	Rauschquelle "Laser"	62
4.2.2.2	Rauschquelle "Streulicht"	65
4.2.2.3	Rauschquelle "Strahlführung"	66
4.2.2.4	Rauschquelle "Gasentladung"	66
4.2.3	Nachweisempfindlichkeit bei der Sättigungsspektroskopie an Xenonisotopen	66
4.3	ZELLENPRÄPARATION	69
4.3.1	Gasentladungszellen	70
4.3.2	Gasentladungstypen	71
4.3.3	Vakuumpumpstand	74
4.3.4	Präparation radioaktiver Xenonisotope	74
4.3.4.1	Allgemeines	75
4.3.4.2	Gastransfer in die Meßzelle	76
4.3.4.3	Einstellung des Betriebsdrucks	77
4.3.4.4	Abschirmung der radioaktiven Strahlung	79

5.	**STÖREINFLÜSSE AUF SÄTTIGUNGSSPEKTREN**	82
5.1	DRUCKVERBREITERUNG DER SÄTTIGUNGSLINIEN	83
5.2	DRUCKVERSCHIEBUNG DER SÄTTIGUNGSLINIEN	86
5.3	LEISTUNGSVERBREITERUNG DER SÄTTIGUNGSSIGNALE	89
5.4	VERBREITERUNG UND AUFSPALTUNG DER SÄTTIGUNGS-SIGNALE DURCH MAGNETFELDER	92
5.5	LINIENFORM DER SÄTTIGUNGSSIGNALE	95
5.6	EINZELBEITRÄGE ZUR BREITE DER SÄTTIGUNGSSIGNALE	98
6.	**ISV- UND HFS-MESSDATEN**	101
6.1	EINLEITUNG	102
6.2	ISV ZWISCHEN STABILEN XE-ISOTOPEN MIT GERADER NEUTRONENZAHL	103
6.3	HFS- UND ISV-UNTERSUCHUNG AN STABILEN UND RADIO-AKTIVEN XE-ISOTOPEN MIT UNGERADER NEUTRONEN-ZAHL IM 467 NM- UND 462 NM-ÜBERGANG	111
6.4	HFS- UND ISV-UNTERSUCHUNG IM 458 NM-ÜBERGANG VON XENON	122
6.5	ISV ZWISCHEN STABILEN QUECKSILBERISOTOPEN MIT GERADER NEUTRONENZAHL IN DEN OPTISCHEN ÜBER-GÄNGEN BEI 436 NM UND 546 NM	125

7.	BESTIMMUNG DES SPEZIFISCHEN MASSENEFFEKTS (SME)	133
7.1	ISV IN μ-MESONISCHEN ATOMEN	134
7.2	ISV IN K_{α} -RÖNTGENÜBERGÄNGEN	135
7.3	$\delta\langle r^2\rangle$ AUS ELEKTRONENSTREUEXPERIMENTEN AM ATOMKERN	136
7.4	SYSTEMATIK DER KERNRADIEN NACH ANGELI	137
7.5	PARAMETRISCHE UNTERSUCHUNGEN DER ISV IN EDELGAS-GÄNGEN	141
7.6	SME-SYSTEMATIK VERGLEICHBARER OPTISCHER ÜBERGÄNGE CHEMISCHER HOMOLOGE	144
7.6.1	Krypton	144
7.6.2	Argon	145
7.6.3	Xenon	147
7.7	BESTIMMUNG DES SME ÜBER EINEN ISOTONISCHEN PLOT	147
7.7.1	SME(Ba) über King-Plot μ-mesonischer und optischer ISV-Daten	150
7.7.2	Relativistische Hartree-Fock-Berechnungen	152
7.7.3	SME(Ba) nach Fischer et al.	153
7.7.4	SME(Ba) nach Angeli	154
7.7.5	SME(Ba) nach Grundevik et al.	154
7.7.6	Zusammenfassung und Diskussion der SME-Werte für den Ba-Übergang bei 553 nm	155
7.8	SEPARATION DER ISV MIT HILFE DER BINDUNGSENERGIE PRO NUKLEON	156
7.9	ZUSAMMENFASSUNG DER XE-SME-WERTE	159

8.	**BERECHNUNG DER KERNLADUNGSRADIUSÄNDERUNGEN**	164
8.1	XENON	164
8.1.1	E_i-Berechnung aus Feinstrukturdaten	165
8.1.2	E_i-Berechnung aus Hyperfeinstrukturdaten	166
8.1.3	Abschirmfaktor ß	167
8.1.4	Korrekturfunktion f(Z)	167
8.1.5	Xe-Kernladungsradiusänderungen	168
8.2	QUECKSILBER	169
8.2.1	Elektronischer Faktor F_i	169
8.2.2	SME des 436 nm-Übergangs	171
8.2.3	Berechnung der Kernladungsradiusänderungen	172
9.	**BESTIMMUNG DER MAGNETISCHEN UND ELEKTRISCHEN KERNMOMENTE DER ISOTOPE ^{127}Xe und ^{133}Xe**	175
9.1	FREQUENZLAGENBESTIMMUNG DER HYPERFEINLINIEN	175
9.2	HYPERFEINANOMALIE UND KERNMOMENTE	179
9.3	DISKUSSION DER KERNMOMENTE	182
9.3.1	^{127}Xe	184
9.3.2	^{133}Xe	184

10.	**DISKUSSION DER KERNLADUNGSRADIUSÄNDERUNGEN**	187
10.1	INTEGRALE ÄNDERUNG DER MITTLEREN QUADRATISCHEN KERNLADUNGSRADIUSÄNDERUNGEN DER XENONISOTOPE	187
10.2	VERGLEICH DER MITTLEREN QUADRATISCHEN KERNLADUNGSRADIEN MIT BERECHNUNGEN NACH DEM DROPLET-MODELL	190
10.3	DEFORMATIONS- UND HAUTDICKENBEITRÄGE DER KERNLADUNGSRADIUSÄNDERUNGEN	192
10.4	ZUSAMMENHANG ZWISCHEN KERNLADUNGSRADIEN UND BINDUNGSENERGIE PRO NUKLEON	197
10.4.1	Elemente des mittelschweren Massenbereichs: Xe-Cs-Ba	198
10.4.2	Elemente des schweren Massenbereichs: Hg-Pb	202
10.5	ISOTONISCHE VERGLEICHE VON ISOTOPIEVERSCHIEBUNGEN	204
10.5.1	Xe-Cs-Ba	204
10.5.2	Hg-Pb	210
10.6	ODD-EVEN-STAGGERING	211
11.	**ZUSAMMENFASSUNG**	217

1. EINLEITUNG

In den vergangenen 15 Jahren erfuhr die optische Spektroskopie einen ungeahnten Aufschwung, der im wesentlichen durch die Verwendbarkeit des Lasers für neue, hochauflösende (Doppler-freie) spektroskopische Methoden /1/ ermöglicht wurde. Frequenzveränderliche Farbstofflaser wurden in vielen Labors mehr oder weniger gleichzeitig für die Untersuchung kernphysikalischer Fragestellungen eingesetzt und ermöglichten sehr genaue Messungen von Hyperfeinstrukturen und Isotopieverschiebungen (ISV) optischer Übergänge.

Die Untersuchung dieser Größen ist möglich, weil sich Kerneigenschaften auch in optischen Spektren manifestieren:

- der Monopolanteil der Coulombwechselwirkung bestimmt die Lage der Zustände;
- elektrische und magnetische Kernmultipole erzeugen Aufspaltungen der Elektronenzustände, die 5 bis 6 Größenordnungen kleiner sind als die Energie der Elektronenzustände und die zur sogenannten Hyperfeinstruktur (HFS) des optischen Spektrums führen;
- die nicht vernachlässigbare Ausdehnung der Kernladung hat eine von Isotop zu Isotop unterschiedliche Monopolwechselwirkung zur Folge. Diese Niveauverschiebung ist von derselben Größenordnung wie die der Hyperfeinstruktur und wird als Feld- oder Volumeneffekt (VE) bezeichnet. Die ISV enthält einen zweiten Term, der von der kinetischen Energie des Massenschwerpunktes herrührt und als Masseneffekt (ME) bezeichnet wird.

Laserspektroskopische Methoden sind im Vergleich zu konventionellen Meßverfahren /2/ ungleich leistungsfähiger. Auf der Suche nach einer optimalen Methode, die die Doppler-Verbreiterung unterdrückt, haben verschiedene Forschungsgruppen für ihre spezielle Problemstellung eine Vielzahl von Doppler-freien Methoden entwickelt. Eine Klassifikation dieser Methoden ist nach Art und Weise der Probenpräparation, der Anregung sowie des Signalnachweises möglich.

Probenpräparation:

- Gas in einer abgeschlossenen Zelle (diese Arbeit),
- thermischer, kollimierter Atomstrahl, der vom Laserstrahl unter rechtem Winkel resonant angeregt wird,
- schneller, nichtthermischer Atom- oder Ionenstrahl, der in kolinearer Geometrie vom Laserstrahl angeregt wird;

Anregung:

- einfache Resonanzübergänge (Doppler-frei nur mit senkrechtem Atomstrahl),
- Zweiquantenanregung (Doppler-frei),
- Mehrquantenanregung und Ionisation (unter gewissen Bedingungen ebenfalls Doppler-frei);

Signalnachweis:

- optischer Nachweis durch Registrierung der Fluoreszenz, der Dispersion, der Polarisation oder der Absorption (diese Arbeit),
- Ladungs- bzw. Teilchennachweis.

Aufgrund der Kombinationsmöglichkeiten zwischen Anregungs-, Präparations- und Nachweisverfahren ist eine Vielzahl von laserspektroskopischen Methoden möglich. Hiermit wurden neue und oftmals völlig unerwartete kernphysikalische Resultate erzielt /3,4/.
Heutzutage liegt die Hauptmotivation für ISV-Untersuchungen in einem besseren Verständnis des Verhaltens von Kernladungsradien bei sukzessivem Einbau von Neutronen in den Atomkern.
Die Stärke optischer Untersuchungsverfahren, insbesondere laserspektroskopischer Methoden, liegt in deren Empfindlichkeit. Erst mit ihnen wird es möglich, Isotope weit jenseits der Stabilitätsgrenzen zu erreichen und somit systematische Untersuchungen an langen Isotopenreihen durchzuführen /5,6/.

Neben den kernphysikalischen Anwendungen sind laserspektroskopische Methoden auch mit großem Erfolg auf die Untersuchung reiner Phänomene der Atomhülle angewandt worden, wie zum Beispiel:

- Untersuchung von Rydbergzuständen /7/
- Untersuchung von Stoßprozessen /8/
- Linienprofiluntersuchungen /9/.

Die hohe Frequenzauflösung, die für alle Doppler-freien laserspektroskopischen Methoden charakteristisch ist, gestattet im Vergleich zu den konventionellen Verfahren zumindest eine um ein bis zwei Größenordnungen genauere Bestimmung der relevanten Parameter wie Lage der Energieniveaus, Linienbreiten oder Linienverschiebungen.

Was die Isotopieverschiebung anbelangt, so konnten auch noch so genaue Messungen sich nicht in entsprechend genauen Absolutwerten für Kernladungsradiusänderungen niederschlagen. Schuld daran ist die Schwierigkeit der Bestimmung der verschiedenen Anteile der ISV, im wesentlichen des spezifischen Masseneffekts (SME). Beschränkt man sich jedoch auf Anwendungen, wo es einer Trennung zwischen Massen- und Volumeneffekt nicht bedarf, so kommt die Genauigkeit der ISV-Daten voll zum Tragen. In diesem Zusammenhang seien als Beispiele genannt:

- Bestimmung der Verhältnisse von Elektronendichteänderungen in zwei Übergängen mittels King-Diagrammen /10/,
- Untersuchung der Gültigkeit des isotonischen Plots und seine Verwendbarkeit zur Bestimmung von spezifischen Masseneffekten /11,12/ (siehe Kapitel 7 und 10),
- Untersuchung der Gültigkeit des Zusammenhangs zwischen Bindungsenergie und Isotopieverschiebung /13,14/.

Alternative Methoden zur Bestimmung von Kernladungsradien oder Kernladungsverteilungen stabiler Isotope sind elastische Elektronenstreuexperimente an Atomkernen /15/ und Isotopieverschiebungsmessungen in Röntgenübergängen myonischer Atome /16/.

Die elastische Elektronenstreuung liefert direkte Informationen über die Kernladungsverteilung und deren Änderung von Isotop zu Isotop, jedoch nur mit schlechter Genauigkeit. Demgegenüber liefern myonische Isotopieverschiebungsdaten als Ergebnis sowohl die absolute Größe der Kernladungsverteilung, das sogenannte Barrettmoment $\langle r^k e^{-\alpha r} \rangle$ /17/, als auch zuverlässige Werte für dessen Änderung von Isotop zu Isotop. Die Genauigkeit der aus myonischen ISV-Daten abgeleiteten Kernradiusänderungen ist im allgemeinen 5 bis 10 Mal größer als die entsprechenden aus Elektronenstreudaten erzielbaren Ergebnisse.

Um die aus myonischen Isotopieverschiebungsmessungen bestimmten Radien mit optischen ISV-Daten vergleichen zu können, müssen die höheren Momente $\delta\langle r^4 \rangle$, $\delta\langle r^6 \rangle$ usw., die in den myonischen Daten enthalten sind, zunächst bestimmt werden. Eine Kombination aus Elektronenstreudaten und myonischen ISV-Daten erlaubt dies mit zufriedenstellender Genauigkeit /18/. Kennt man die Momente von mindestens drei Isotopen, so kann man die beiden wesentlichen Faktoren der optischen ISV bestimmen. Aus dieser Analyse erhält man numerische Werte für den Kern- und Hüllenanteil, d.h. für die Elektronendichteänderung am Kernort und für den spezifischen Masseneffekt.

Solange zuverlässige Rechnungen des spezifischen Masseneffekts optischer Übergänge nicht möglich sind, müssen myonische, Elektronenstreu- und optische Isotopieverschiebungsdaten als einander ergänzende Daten betrachtet und behandelt werden. Für sich betrachtet liefern optische Messungen sehr genaue relative Kernladungsradiusänderungen insbesondere auch für radioaktive Isotope, für die Elektronenstreuung und myonische Isotopieverschiebung aus Intensitätsgründen versagen.

Leider gibt es bis heute weder myonische noch Elektronenstreudaten für Xenonisotope. Mit den optischen ISV-Daten dieser Arbeit ist, was die Genauigkeit anbelangt, ein vorläufiger Abschluß erreicht. Sie umfassen alle stabilen (N = 70, 72, 74, 75, 76, 77, 78, 80, 82) sowie zwei radioaktive (N = 73, 79) Xenonisotope. Eine weitere Steigerung der Genauigkeit erscheint derzeit nicht sinnvoll, vielmehr muß das nächste Ziel eine Ausdehnung dieser Untersuchungen auf einen noch größeren Massenbereich sein.

Kapitel 2 dieser Arbeit faßt zusammen, warum solche Untersuchungen am Element Xenon interessant sind und gibt somit sowohl die grundsätzliche als auch die spezielle Motivation für diese Arbeit wieder. Nach einer knappen Zusammenstellung der für die vorliegende Arbeit relevanten theoretischen Grundlagen der Isotopieverschiebung und Hyperfeinstruktur im Kapitel 3 folgt im Kapitel 4 eine ausführliche Darstellung und Diskussion der experimentellen Methoden. Kapitel 5 und 6 befassen sich mit den Meßdaten und deren Auswertung. Möglichkeiten der Bestimmung des spezifischen Masseneffekts optischer Übergänge im allgemeinen und der hier untersuchten Xenonübergänge im besonderen werden im Kapitel 7 ausführlich diskutiert, da zur Bestimmung des Volumeneffekts der spezifische Masseneffekt bekannt sein muß. Erst danach kann mit den Daten aus Kapitel 8, die den elektronischen Anteil der Isotopieverschiebung beinhalten, die Kernladungsradiusänderung abgeleitet werden. Kapitel 9 stellt die Ergebnisse der Hyperfeinstrukturuntersuchungen zusammen. Dies beinhaltet auch einen Vergleich der entsprechenden Größen mit denen der Nachbarelemente Tellur und Barium. Im Kapitel 10 werden sowohl die Isotopieverschiebungs- als auch die Hyperfeinstrukturergebnisse diskutiert und zusammenfassend dargestellt.

REFERENZEN

/1/ W. Demtröder: Laser Spectroscopy, Springer-Verlag 1981

/2/ H. Kopfermann: Nuclear Moments, Academic Press 1958

/3/ J. Bonn, G. Huber, H.J. Kluge, E.W. Otten: Z. Physik **A 276**, 203 (1976)

/4/ H. Gerhardt, E. Matthias, H. Rinneberg, F. Schneider, A. Timmermann, R. Wenz, P.J. West: Z. Physik **A 292**, 7 (1979)

/5/ C. Thibault, F. Touchard, S. Büttgenbach, R. Klapisch, M. de Saint Simon, H.T. Duong, P. Jacquinot, P. Juncar, S. Liberman, P. Pillet, J. Pinard, J.L. Vialle, A. Pesnelle, G. Huber: Phys. Rev. **C 23**, 2720 (1981)

/6/ C. Thibault, F. Touchard, S. Büttgenbach, R. Klapisch, M. de Saint Simon, H.T. Duong, P. Jacquinot, P. Juncar, S. Liberman, P. Pillet, J. Pinard, A. Pesnelle, The Isolde Collaboration, G. Huber: Nuclear Physics **A 367**, 1 (1981)

/7/ S.A. Edelstein, T.F. Gallagher: Advances in Atomic and Molecular Physics, Vol. **14** (1978)

/8/ O. Vallée, E. Marié, N. Tran Minh, R. Vetter: Phys. Rev. **A 24**, 1391 (1981)

/9/ C. Brechignac, R. Vetter, P.R. Berman: Phys. Rev. **A 17**, 1609 (1978)

/10/ W.H. King: J. Opt. Soc. Am. **53**, 638 (1963)

/11/ W.H. King, H.G. Kuhn, D.N. Stacey: Proc. R. Soc. **A 296**, 24 (1966)

/12/ W. Fischer, H. Hühnermann, G. Krömer, H.J. Schäfer: Z. Physik **270**, 113 (1974)

/13/ S. Gerstenkorn: C. R. Acad. Sci. Ser. **B 268**, 1636 (1969)

/14/ R. Wenz, E. Matthias, H. Rinneberg, F. Schneider: Z. Physik **A 295**, 303 (1980)

/15/ R. Hofstadter: Ann. Rev. Nucl. Sci., **7**, 231 (1957)

/16/ E.R. Macagno, S. Bernow, S. Cheng, S. Devons,
I. Duerdoth, D. Hitlin, J. Kast, W. Lee, C. Wu,
R.C. Barrett: Phys. Rev. **C 1**, 1202 (1970)
/17/ E.B. Shera, E.T. Ritter, R.B. Perkins, G.A. Rinker,
L.K. Wagner, H.D. Wohlfahrt, G. Fricke,
R.M. Steffen: Phys. Rev. **C 14**, 731 (1976)
/18/ H.D. Wohlfahrt, E.B. Shera, M.V. Hoehn, Y. Yamazaki,
R.M. Steffen: Phys. Rev. **C 23**, 533 (1981)

2. WARUM ISV AN XENONISOTOPEN?

Neben Zinn ist Xenon das Element mit den meisten stabilen Isotopen und daher sehr gut geeignet, Änderungen von Kerneigenschaften, wie z. B. Kernradien an einer langen Isotopenreihe zu verfolgen.

Tabelle 1 zeigt eine Zusammenstellung wichtiger Kerndaten einer Auswahl von Xenonisotopen /1/. Von Bedeutung ist, daß mit dem Isotop ^{136}Xe die magische Neutronenzahl N = 82 erreicht wird, die den Abschluß der $h_{11/2}$-Schale kennzeichnet.

A	N	I	$T_{1/2}$	% production
124	70	0		0.096
125	71	1/2	17 h	$^{127}I(p, 3n)$
126	72	0		0.090
127	73	1/2	36.4 d	$^{133}Cs(p, 2p5n)$
128	74	0		1.92
129	75	1/2		26.44
130	76	0		4.08
131	77	3/2		21.18
132	78	0		26.89
133	79	3/2	5.27 d	^{235}U fission-
134	80	0		10.44 product
135	81	3/2	9.2 h	^{235}U
136	82	0		8.87

Tab.1 Kernphysikalische Eigenschaften der Xenonisotope ^{124}Xe bis ^{136}Xe. Für die radioaktiven Isotope ist an Stelle der Häufigkeit ein typischer Herstellungsprozeß angegeben.

Solche Schalenabschlüsse treten bei ISV-Messungen als Unregelmäßigkeiten, d.h. als Abweichungen vom normalen Verlauf des Feldeffekts in Erscheinung.

Neben den stabilen Isotopen besitzt Xenon eine Reihe von radioaktiven Isotopen mit Halbwertszeiten im Bereich einiger Stunden bis zu einigen Wochen. Im Rahmen dieser Arbeit konnten zwei dieser radioaktiven Isotope, ^{127}Xe (36.4 d) und ^{133}Xe (5.3 d), untersucht werden. Aufgrund der dabei gewonnenen Erfahrungen erscheint es möglich, alle in Tabelle 1 aufgeführten Isotope sowie die Isomere ^{133m,131m,129m}Xe mit Hilfe unserer Zellentechnik zu vermessen und damit die Lücken zwischen den stabilen Isotopen zu schließen.

Für das Nachbarelement Barium existieren ebenfalls sehr genaue ISV-Daten, die sich über einen noch größeren Massenbereich (A = 124 bis 146) erstrecken, als dies für Xenon derzeit möglich ist /2,3/. Aus verschiedenen Gründen bietet sich ein Vergleich der Kerneigenschaften dieser beiden Elemente an. In dieser Arbeit wurden ISV-Daten der beiden Elemente miteinander verglichen mit dem Ziel, den spezifischen Masseneffekt in den untersuchten Xenonübergängen zu bestimmen /Kap. 7/.

Wegen der interessanten Eigenschaften der Xenonisotope existiert eine Reihe von ISV-Messungen /4,5,6/. Alle haben jedoch eines gemeinsam, daß sie entweder nicht die erforderliche Anzahl von Isotopenpaaren oder nicht die notwendige Genauigkeit besitzen.

ISV-Messungen an Elementen im mittelschweren Massenbereich ($A \approx 130$) stellen wegen der im allgemeinen kleinen ISV-Werte höchste Anforderungen an das Frequenzauflösungsvermögen. ISV-Untersuchungen können daher nur an Übergängen zwischen möglichst langlebigen Niveaus durchgeführt werden.

Im Gegensatz zu den Verhältnissen bei den Alkali- und Erdalkalielementen /7,8,9/ sind solche günstigen Übergänge bei den Edelgasen nicht verfügbar.
Hier muß das $1s_5$-Ausgangsniveau ($6s[3/2]_2$, siehe Abb. 1) erst durch Elektronenstöße in einer Gasentladung besetzt werden. Die erreichbare Besetzungsdichte ist jedoch nur gering. Im Vergleich zu den Anregungsverhältnissen bei den Alkalien führt dies zu einer drastischen Reduzierung der Nachweisempfindlichkeit. Die Kompensation dieses Nachteils stellt eine große experimentelle Herausforderung dar. Sie ist mehr als zufriedenstellend gelungen /Kap. 4/.

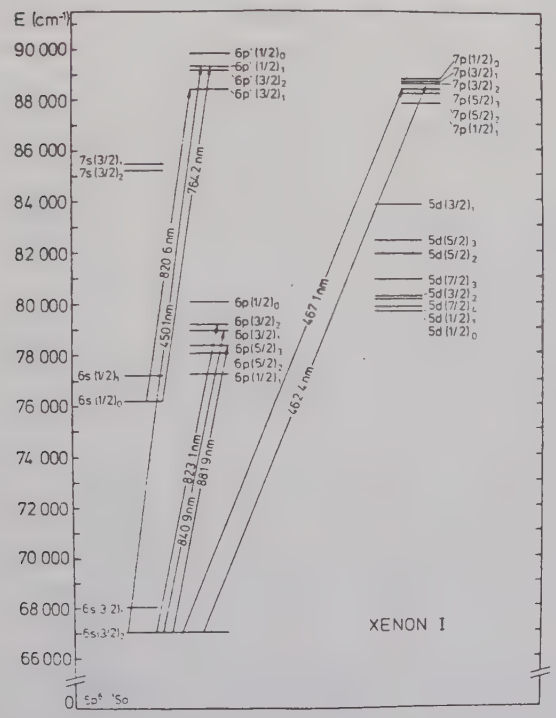

Abb. 1 Ausschnitt aus dem Xe-Termschema. Die Messungen wurden in den Übergängen bei 467 nm, 462 nm und 450 nm durchgeführt.

Die im Rahmen dieser Arbeit vorgestellten Messungen sind auch als Erweiterung der ISV-Untersuchungen an den Edelgasen Argon /10/ und Krypton /11/ zu verstehen, die mit demselben Laserspektrometer durchgeführt wurden und zu einer Systematik der ISV der Edelgase beitragen sollen. Mit den jetzt vorliegenden Xenondaten ist man dieser Zielsetzung ein gutes Stück näher gekommen /Kap. 10/.

REFERENZEN

/1/ C.M. Lederer, V.S. Shirley: Table of Isotopes, Seventh Edition (John Wiley & Sons, NY, 1978)

/2/ K. Bekk, A. Andl, S. Göring, A. Hanser, G. Nowicki, H. Rebel, G. Schatz: Z. Physik **A 291**, 219 (1979)

/3/ R. Neugart, F. Buchinger, W. Klempt, A.C. Mueller, E.W. Otten, E. Ekström, J. Heinemeier: Hyperfine Interactions **9**, 151 (1981)

/4/ D.A. Jackson, M.C. Coulombe: Proc. R. Soc. Lond. **A 338**, 277 (1974)

/5/ W. Fischer, H. Hühnermann, G. Krömer, H.J. Schäfer: Z. Physik **270**, 113, (1974)

/6/ G. Borghs, P. De Bisshop, R.E. Silverans, M. van Hove, J.M. van den Cruyce: Z. Physik **A 299**, 11 (1981)

/7/ H. Gerhardt, E. Matthias, F. Schneider, A. Timmermann: Z. Physik **A 288**, 327 (1978)

/8/ E. Bergmann, P. Bopp, Ch. Dorsch, J. Kowalski, F. Träger, G. zu Putlitz: Z. Physik **A 294**, 319 (1980)

/9/ P.E.G. Baird, R.J. Brambley, K. Burnett, D.N. Stacey, D.M. Warrington, G.K. Woodgate: Proc. R. Soc. Lond. **A 365**, 567 (1979)

/10/ F. Jeschonnek: Diplomarbeit FU Berlin, FB 20 (1980)

/11/ H. Gerhard, E. Matthias, H. Rinneberg, F. Schneider, A. Timmermann, R. Wenz, P.J. West: Z. Physik **A 292**, 7 (1979)

3.	**THEORIE DER HYPERFEINSTRUKTUR (HFS) UND DER ISOTOPIEVERSCHIEBUNG (ISV)**
3.1	ELEMENTARE THEORIE DER HYPERFEINSTRUKTUR
3.2	ALLGEMEINE THEORIE DER HYPERFEINSTRUKTUR
3.3	HYPERFEINANOMALIE
3.4	ISOTOPIEVERSCHIEBUNG
3.4.1	Allgemeine Grundlagen
3.4.2	Masseneffekte
3.4.3	Volumeneffekt
3.4.4	Aufteilung der ISV in Massen- und Volumeneffekt
3.4.5	Bestimmung der Kernladungsradiusänderungen aus dem VE
3.4.6	Trennung des sphärischen und des Deformationsanteils des VE

3. THEORIE DER HYPERFEINSTRUKTUR (HFS) UND DER ISOTOPIE-VERSCHIEBUNG (ISV)

Die Entwicklung hochauflösender Spektrographen führte am Ende des 19. Jahrhunderts zur Entdeckung der sogenannten Hyperfeinstruktur in optischen Übergängen /1-3/.
Die Hyperfeinstrukturaufspaltungen liegen im Bereich von 10 MHz bis 10 GHz und sind somit ungefähr tausendmal kleiner als Feinstrukturaufspaltungen.

Die Hyperfeinstrukturaufspaltung atomarer Energieniveaus wird von der Wechselwirkung der Elektronen mit dem Atomkern /4/, genauer von den Kernströmen und den nichtsphärischen Anteilen der Kernladungsverteilung, verursacht. Die Analyse dieser Aufspaltungen führt zu Informationen über magnetische Dipolmomente und elektrische Quadrupolmomente /5/. Extrem genaue Messungen dieser Größen können sogar die Existenz höherer magnetischer und elektrischer Momente aufzeigen /6/. Hinzu kommen relativ kleine Effekte, der Feldeffektanteil der Isotopieverschiebung und die Hyperfeinstrukturanomalie, die durch die räumliche Verteilung der Kernladung bzw. der Kernströme hervorgerufen werden.
Zusätzlich enthält die ISV einen kinetischen Beitrag aufgrund der Bewegung des Massenschwerpunktes. So wurde schon früh im Wasserstoffspektrum das Auftreten von schwachen, zu kürzeren Wellenlängen hin verschobenen Satellitenlinien beobachtet /7/. Diese Linien ließen sich nicht durch magnetische oder elektrische Wechselwirkungen mit dem Kern erklären, sondern mußten als Spektrallinien des Wasserstoffisotops Deuterium gedeutet werden. Der Abstand zwischen der Hauptkomponente und der Nebenlinie wurde als Isotopieverschiebung (ISV) bezeichnet, stellt jedoch nur den Masseneffekt eines punktförmigen Kerns dar. Der Beitrag der

potentiellen Energie aufgrund der endlichen Ausdehnung der Kernladung tritt erst bei etwas schwereren Kernen (z.B. ab Na) meßbar in Erscheinung.

3.1 ELEMENTARE THEORIE DER HYPERFEINSTRUKTUR

Der wichtigste Beitrag zur Hyperfeinstruktur eines atomaren Feinstrukturniveaus wird durch die Kopplung des magnetischen Dipolmoments μ_I des Kerns mit Spin I und dem von Elektronen am Kernort verursachten Magnetfeld $H_J(0)$ hervorgerufen. Der Hamiltonoperator für diese Wechselwirkung läßt sich folgendermaßen darstellen:

$$\mathcal{H} = -\vec{\mu}_I \vec{H}_J(0) \quad . \tag{3-1}$$

Das Magnetfeld am Kernort $H_J(0)$ wird sowohl durch die Bahnbewegung des Elektrons als auch durch dessen magnetisches Spin-Dipolmoment verursacht und ist eine Funktion des Gesamtdrehimpulses J der Elektronen. Das Kerndipolmoment läßt sich darstellen als

$$\vec{\mu}_I = \mu_N g_I \vec{I} = \frac{\mu_I}{I} \vec{I} \quad , \tag{3-2}$$

wobei μ_N das Kernmagneton und g_I der Kern-g-Faktor ist. Betrachtet man nur Diagonalelemente von I und J, so kann man den Hamiltonoperator von Gl. (3-1) durch den äquivalenten Operator $\mathcal{H}_m$ ersetzen.

$$\mathcal{H}_m = hA\vec{I}\vec{J} \tag{3-3}$$

Hierin ist A die magnetische Dipol-Wechselwirkungskonstante (Intervallkonstante). Für sie gilt:

$$A = -\frac{\mu_I H_J(0)}{h I J} \tag{3-4}$$

In der $|\,IJFM\,\rangle$ -Darstellung, in der $\vec{F} = \vec{I} + \vec{J}$ der Gesamtdrehimpuls und M der Eigenwert von F_z ist, gilt für die resultierende Zusatzenergie E_m :

$$E_m = \frac{hA}{2} K \tag{3-5}$$

mit $K = F(F+1) - I(I+1) - J(J+1)$ und $I \geq 1/2$, $J \geq 1/2$.

Der zweite Beitrag zur Hyperfeinstruktur, die elektrische Quadrupol-Wechselwirkung, wird durch die Wechselwirkung zwischen dem Kern-Quadrupolmoment Q_I ($I > 1/2$) und dem elektrischen Feldgradienten $q_J(0)$ der Elektronen am Kernort bestimmt. Der die Wechselwirkung beschreibende Hamilton-Operator H_e ist ein Skalarprodukt zweier Tensoren zweiten Ranges.

$$\mathcal{H}_e = \vec{Q}_I \vec{q}_J \tag{3-6}$$

Betrachtet man nur Matrixelemente, die bezüglich I und J diagonal sind, so wird aus obiger Gleichung:

$$\mathcal{H} = hB \frac{[(3\vec{I}\vec{J})^2 + (3/2)\vec{I}\vec{J} - \vec{I}^2]}{2I(2I-1)J(2J-1)} \,. \tag{3-7}$$

$B = e^2 Q_I q_J(0)$ ist hierin die elektrische Quadrupolwechselwirkungskonstante.

Der Energiebeitrag dieser Wechselwirkung ist:

$$E_e = \frac{hB}{4} \cdot \frac{(3/2)\,K(K+1) - 2I(I+1)J(J+1)}{I(2I-1)J(2J-1)} \qquad (3\text{-}8)$$

mit $I \geq 1$ und $J \geq 1$.

Die Gesamtenergie der Hyperfeinwechselwirkung eines freien Atoms setzt sich aus der Summe der Energie aus Gl. (3-5) und Gl. (3-8) zusammen. Als Resultat erhält man die bekannte Formel nach Casimir für die diagonale (I und J sind "gute" Quantenzahlen) Hyperfeinstruktur:

$$E_{HFS} = \frac{hA}{2} + \frac{hB}{4} \cdot \frac{(3/2)K(K+1) - 2I(I+1)J(J+1)}{I(2I-1)J(2J-1)} \qquad (3\text{-}9)$$

Die Anzahl der HFS-Terme beträgt 2I+1, wenn $J \geq I$ und 2J+1, wenn $I \geq J$ ist. Es läßt sich zeigen, daß die HFS-Aufspaltung die Schwerpunktslage des Feinstrukturniveaus nicht verändert.

Neben den bekannten Auswahlregeln für elektrische Dipolübergänge:

$$\Delta J = 0, +1, -1 \quad (J'' = 0 \text{ nach } J' = 0 \text{ nicht erlaubt})$$

ist für optische Übergänge zwischen Hyperfeinstrukturniveaus zusätzlich zu fordern:

$$\Delta F = 0, +1, -1 \quad (F'' = 0 \text{ nach } F' = 0 \text{ nicht erlaubt}).$$

Die relativen Linienintensitäten von HFS-Übergängen $S(IJ_1F_1, IJ_2, F_2)$ sind mit Hilfe von 6-j-Symbolen darstell-und berechenbar /8/:

$$S(IJ_1F_1, IJ_2F_2) = \frac{(2F_1+1)(2F_2+1)}{2I+1} \begin{Bmatrix} J_1 & F_1 & I \\ F_2 & J_2 & 1 \end{Bmatrix} . \quad (3\text{-}10)$$

Diese relativen Linienintensitäten wurden von Kopfermann /9/für viele I- und F-Werte tabuliert.

3.2 ALLGEMEINE THEORIE DER HYPERFEINSTRUKTUR

Die elektromagnetische Wechselwirkung zwischen dem Kern und den Elektronen eines Atoms kann in seiner allgemeinsten Form wie folgt dargestellt werden /10/:

$$\mathcal{H}_{HFS} = \sum_k T_n^{(k)} \cdot T_e^{(k)} . \quad (3\text{-}11)$$

$T_n^{(k)}$ und $T_e^{(k)}$ sind sphärische Tensoroperatoren vom Rang k und stehen repräsentativ für den Kern- und den Hüllenanteil der Hyperfeinwechselwirkung. Geradzahlige k-Werte stehen für elektrische Wechselwirkungen, während ungeradzahlige k-Werte für magnetische Wechselwirkungen stehen. k = 0-Terme beschreiben sphärische Anteile der Kernladung, d.h. die Coulombwechselwirkung des Elektrons mit der punktförmigen Kernladung. Sie ist Teil des Hamiltonoperators der Feinstruktur und für die Betrachtung der Hyperfeinstruktur ohne Bedeutung. k>2-Terme können im Vergleich zu k = 1- und k = 2-Termen wegen ihrer Kleinheit vernachläßigt werden. Ihre Existenz ist in speziellen Fällen nachweisbar.

Die Hyperfeinwechselwirkung hängt sehr stark vom Wert der elektronischen Wellenfunktionen in der Umgebung des Atomkerns ab. Die Elektronengeschwindigkeiten in diesen Bereichen sind im Vergleich zur Lichtgeschwindigkeit nicht mehr zu vernachlässigen. Aus diesem Grund sollten die Elektronen mit relativistischen Dirac-Wellenfunktionen beschrieben werden. Es kann jedoch gezeigt werden /11/, daß die Matrixelemente für den Hamiltonoperator in LS-Kopplung -gewonnen mit relativistischen Eigenfunktionen- den Matrixelementen eines effektiven Hamiltonoperators H_{eff} in LS-Kopplung -gewonnen mit nichtrelativistischen Wellenfunktionen- äquivalent sind. Es stellt sich heraus, daß dieser effektive Hamiltonoperator dieselbe Form wie Gl. 3-11 hat. Neben den relativistischen Effekten berücksichtigt dieser Operator Polarisierungseffekte und Konfigurationswechselwirkungen.

Unter Verwendung der üblichen $|\,IJFM\rangle$ -Darstellung sowie Störungsrechnung erster Ordnung erhält man für die Erwartungswerte der Eigenfunktionen des Hamiltonoperators folgenden Ausdruck /12/:

$$E_F = \langle IJFM \,|\, H_{HFS} \,|\, IJFM \rangle \qquad (3\text{-}12)$$

$$= \sum_{K=1}^{2} (-1)^{J+I+F} \begin{Bmatrix} I & J & F \\ J & I & K \end{Bmatrix} \langle J \| T_e^{(K)} \| J \rangle \langle I \| T_n^{(K)} \| I \rangle$$

Die reduzierten Matrixelemente sind unabhängig von der magnetischen Quantenzahl M. Die F-Abhängigkeit wird durch das 6-j-Symbol und einen Phasenfaktor vollständig beschrieben.
Die Einführung der Parameter A(J) vereinfacht die weitere Behandlung:

$$A_k(J) = \langle II \,|\, T_n^{(K)} \,|\, II \rangle \langle JJ \,|\, T_e^{(K)} \,|\, JJ \rangle \qquad (3\text{-}13)$$

Unter Verwendung des Wigner-Eckart-Theorems können diese Parameter mit den reduzierten Matrixelementen aus Gl. (3-12) verknüpft werden. Man erhält:

$$A_K(J) = \begin{pmatrix} I & K & I \\ -I & 0 & I \end{pmatrix} \langle I \| T_n^{(K)} \| I \rangle \begin{pmatrix} J & K & J \\ -J & 0 & J \end{pmatrix} \langle J \| T_e^{(K)} \| J \rangle \quad . \tag{3-14}$$

$\langle II \| T_n^{(1)} \| II \rangle$ legt das magnetische Moment μ_I fest, während das Kernquadrupolmoment Q_I durch $(2/e) \langle II \| T_n^{(2)} \| II \rangle$ dargestellt wird. Durch Kombination der Gl. (3-12), (3-13) und (3-14) mit expliziten Ausdrücken für die 3-j- und 6-j-Symbole erhält man Gl. (3-9), sofern man für $A_1(J) = AIJ$ und für $A_2(J) = (1/4)B$ setzt. Auf diese Art und Weise werden die magnetische Dipolkonstante A und die elektrische Quadrupolkonstante B mit den reduzierten Tensoroperatoren $T_e^{(1)}$ und $T_e^{(2)}$ über die reduzierten Matrixelemente verknüpft:

$$A_J = \frac{\mu_I}{I} \left[J(J+1)(2J+1) \right]^{-1/2} \langle J \| T_e^{(1)} \| J \rangle \tag{3-15}$$

und

$$B_J = 2eQ \left[\frac{2J(2J-1)}{(2J+3)(2J+2)} \right]^{1/2} \langle J \| T_e^{(2)} \| J \rangle \quad . \tag{3-16}$$

Für die elektronischen Tensoroperatoren läßt sich ebenfalls ein expliziter Ausdruck finden /13/:

$$T_e^{(1)} = 2\mu_0 \sum_{i=1}^{N} \left[\vec{l}_i \left\langle \frac{1}{r_i^3} \right\rangle_{01} - \sqrt{10} \left(\vec{s}_i \vec{C}_i^{(2)} \right) \left\langle \frac{1}{r_i^3} \right\rangle_{12} + \vec{s}_i \left\langle \frac{1}{r_i^3} \right\rangle_{10} \right] \tag{3-17}$$

$$T_e^{(2)} = e \sum_{i=1}^{N} \Big[-\vec{C}_i^{(2)} \left\langle \frac{1}{r_i^3} \right\rangle_{02} + \left(\vec{s}_i \left(\vec{C}_i^{(4)} \vec{l}_i \right)^3 \right)^2 \left\langle \frac{1}{r_i^3} \right\rangle_{13} + \left(\vec{s}_i \vec{l}_i \right)^2 \left\langle \frac{1}{r_i^3} \right\rangle_{11} \Big] \quad ; \tag{3-18}$$

$\vec{l}_i$ ist der Bahndrehimpuls des i-ten Elektrons, $\vec{s}_i$ der Elektronenspin und $\vec{C}_i^{(2)}$ bzw. $\vec{C}_i^{(4)}$ stellt die modifizierte sphärische Kugelfunktion zweiter bzw. vierter Ordnung dar. Die Ausdrücke $\langle 1/r^3 \rangle_{nl}$ stellen Radialintegrale vom Typ $\int R_{nl}(r) \cdot \frac{1}{r_i^3} R_{nl}(r) r^2 dr$ dar, während $R_{nl}(r)$ den Radialanteil der elektronischen Wellenfunktionen beschreibt. Die Summierung erstreckt sich über alle Elektronen nicht abgeschlossener Schalen.

Der erste Term in Gl. (3-17) berücksichtigt das durch die Bahnbewegung von Elektronen (außer s-Elektronen) verursachte Magnetfeld am Kernort. Der zweite Term ist der Spin-Dipol-Beitrag, der aufgrund des intrinsischen Spin-Dipolmoments der Elektronen ein zusätzliches Magnetfeld am Kernort bewirkt. Der letzte Term in Gl. (3-18) beschreibt die Fermi-Kontakt-Wechselwirkung der s-Elektronen.

Im nichtrelativistischen Grenzfall reduzieren sich die Radialintegrale $\langle 1/r^3 \rangle_{01}$, $\langle 1/r^3 \rangle_{12}$ und $\langle 1/r^3 \rangle_{02}$ zu einem Grenzwert-Integral $\langle 1/r^3 \rangle_{nl}$ $(l > 0)$. Für s-Elektronen erhält man im nichtrelativistischen Grenzfall $\langle 1/r^3 \rangle_{10} = 4\pi\delta\langle r \rangle$. Die Integrale $\langle 1/r^3 \rangle_{13}$ und $\langle 1/r^3 \rangle_{11}$ haben vollständig relativistischen Charakter und verschwinden daher im nichtrelativistischen Fall.

Da es schwierig ist, die Radialintegrale in Gl. (3-17, 3-18) zu berechnen, werden diese oft als freie Radialparameter angesehen und über eine Anpassung an experimentelle Hyperfeinstruktur-Daten bestimmt. Diese Ein-Elektronen-Hyperfeinstruktur-Parameter werden üblicherweise wie folgt mit den Radialparametern aus Gl. (3-17, 3-18) verknüpft:

$$a_{10}(i) = \frac{4}{3}\frac{\mu_I}{I}\mu_B \left\langle \frac{1}{r_i^3} \right\rangle_{10} \qquad (3\text{-}19)$$

$$a_{kl}(i) = 2\frac{\mu_I}{I}\mu_B \left\langle \frac{1}{r_i^3} \right\rangle_{kl} \qquad (3\text{-}20)$$

$$b_{kl}(i) = e^2 Q_I \left\langle \frac{1}{r_i^3} \right\rangle_{kl} . \qquad (3\text{-}21)$$

Diese Radialparameter $\langle 1/r^3 \rangle_{kl}$ können auch semiempirisch bestimmt werden, wenn die Feinstrukturkonstante ξ_i bekannt ist /14/

$$\left\langle \frac{1}{r_i^3} \right\rangle_{kl} = 0.17114\, F_{kl}(i, Z_{eff}) \frac{\xi_i}{Z_{eff} H} \cdot \frac{1}{a_0^3} \qquad (3\text{-}22)$$

F_{kl} und H sind die relativistischen Korrekturkonstanten nach Casimir /5/, die von Kopfermann /9/ tabelliert wurden. Z_{eff} ist die effektive Ladungszahl. Für p-Elektronen ist Z_{eff} = Z-4, für d-Elektronen ist Z_{eff} = Z-11.

Der Parameter $\langle 1/r^3 \rangle_{10}$ für ein ungepaartes Elektron ist mit der Dichte des s-Elektrons am Kernort $\psi_s(0)$ über die folgende Beziehung verknüpft:

$$\left\langle \frac{1}{r_i^3}(s) \right\rangle_{10} = 4\pi \left|\psi_s(0)\right|^2 F(1/2, Z_{eff})(1-\delta)(1-\varepsilon) \qquad (3\text{-}23)$$

F, δ und ε sind relativistische Korrekturfaktoren /9/.

3.3 HYPERFEINANOMALIE

Aus Gl. (3-15, 3-16) ist ersichtlich, daß der Intervallfaktor A ein Produkt aus einem rein elektronischen Faktor und einem Kernfaktor μ_I/I ist. Für die Intervallfaktoren A_1 und A_2 zweier Isotope ein- und desselben Hyperfeinniveaus sollte dann die folgende Beziehung gelten:

$$\frac{A_1}{A_2} = \frac{\mu_I(1)\, I_2}{\mu_I(2)\, I_1} = \frac{g_I(1)}{g_I(2)} \quad . \tag{3-24}$$

Dies gilt unter der Annahme, daß die elektronischen Faktoren für beide Isotope identisch sind. Dasselbe Argument gilt auch für die Quadrupolwechselwirkungskonstanten B_1 und B_2.

$$\frac{B_1}{B_2} = \frac{Q_I(1)}{Q_I(2)} \quad . \tag{3-25}$$

Obwohl Gl. (3-24) mit hoher Genauigkeit erfüllt ist, wurden auf experimentellem Wege Abweichungen entdeckt, die als magnetische Hyperfeinanomalien $^1\Delta^2$ wie folgt beschrieben werden können /15/:

$$^1\Delta^2 = \frac{A_1\, g_I(2)}{A_2\, g_I(1)} - 1 \quad . \tag{3-26}$$

Diese Anomalien sind im allgemeinen wesentlich kleiner als 1%. Für die Quadrupolwechselwirkungskonstanten sind bis heute keine derartigen Anomalien entdeckt worden, obwohl man hier viel größere Abweichungen erwarten würde. Der Grund liegt darin, daß Quadrupolmomente ausnahmslos mit großen Ungenauigkeiten behaftet sind, während die g_I-Faktoren aller

stabilen Isotope mit I = 0 aus NMR-Messungen mit sehr hoher Genauigkeit bekannt sind.

Hyperfeinanomalien sind ein klarer Hinweis, daß s-Elektronen an der magnetischen Dipolwechselwirkung teilhaben. Den Beitrag zu $^1\Delta^2$, der durch Unterschiede in der Kernladungsverteilung hervorgerufen wird, bezeichnet man als Rosenthal-Breit-Effekt. In der semiempirischen Berechnung der Hyperfeinkonstante von Gl. (3-23) wird dieser Effekt durch den Korrekturfaktor $(1-\delta)$ berücksichtigt /9/.

Den Beitrag, der durch eine unterschiedliche Verteilung des Kernmagnetismus hervorgerufen wird, nennt man Bohr-Weiskopf-Effekt. Er wird in Gl.(3-23) durch den Korrekturfaktor $(1-\varepsilon)$ beschrieben /9/.
Im Prinzip erwartet man auch eine rein elektronisch verursachte Hyperfeinanomalie, wenn die Beimischung anderer Konfigurationen in einen F-Zustand für die Isotope 1 und 2 verschieden ist. Dieser Effekt hat jedoch für unsere Untersuchungen im Xenon keine Bedeutung.

3.4 ISOTOPIEVERSCHIEBUNG (ISV)

3.4.1 Allgemeine Grundlagen

Verschiedene Isotope eines Elementes absorbieren oder emittieren in einem optischen Übergang Licht mit leicht unterschiedlichen Frequenzen. Für ein Isotopenpaar mit den Massen A und A' $(A > A')$ wird die Differenz der Übergangsfrequenzen $\delta\nu_i^{A,A'} = \nu_i(A) - \nu_i(A')$ als Isotopieverschiebung (ISV) bezeichnet. Der Einfachheit halber soll in den folgenden Unterkapiteln angenommen werden, daß die Isotope keine Hyperfeinstruktur besitzen.

Wir betrachten also nur Isotope mit I = 0 und schließen magnetische Beiträge zur Isotopieverschiebung aus.

Um die ISV einer Spektrallinie ermitteln zu können, muß die Energieverschiebung der beteiligten Niveaus berechnet werden. Als Bezugsniveau verwendet man den entsprechenden Feinstruktur-Term eines fiktiven Atoms mit einem punktförmigen Kern unendlicher Masse. Für ein neutrales Atom mit Z Elektronen läßt sich der Hamilton-Operator für die Energie des Feinstruktur-Term wie folgt darstellen:

$$\mathcal{H}_{FEIN} = \frac{1}{2m_e}\sum_i \vec{p}_i^{\,2} - \sum_i \frac{Ze^2}{r_i} + \sum_{i\neq j}\frac{e^2}{r_{ij}} + \sum_i \xi_i \vec{l}_i \vec{s}_i \qquad (3\text{-}27)$$

Die Summierung geht über alle Elektronen des Atoms. $\vec{p}_i$ ist der Impuls des i-ten Elektrons, m_e die Elektronenmasse und e die Elementarladung. Der erste Term in Gl. (3-27) ist der Operator der kinetischen Energie der Elektronen. Der zweite und dritte Term stehen für die potentielle Energie der elektrostatischen Wechselwirkung zwischen dem Kern und den Elektronen sowie für die Wechselwirkung zwischen den Elektronen selbst. $\vec{r}_i = |\vec{r}_i|$ ist die Ortskoordinate des i-ten Elektrons, während $\vec{r}_{ij} = |\vec{r}_i - \vec{r}_j|$ den Abstand zweier Elektronen i und j bezeichnet. Der letzte Term in Gl. (3-27) beschreibt die Spin-Bahn-Wechselwirkung, wobei $\vec{l}_i$ den Bahndrehimpuls, $\vec{s}_i$ den Spin des Elektrons und ξ_i die Spin-Bahn-Wechselwirkungskonstante bezeichnet.

Alle Effekte, die auf einem endlichen Massenverhältnis Zm_e/M (M = Kernmasse) oder der Ausdehnung des Atomkerns beruhen, sind im Hamilton-Operator der Gl. (3-27) vernachlässigt. Berücksichtigt man diese Einflüsse, so führt die endliche Masse des Atomkerns zu einem sogenannten Masseneffekt (ME) und die Ausdehnung des Kerns zu einem Volumeneffekt (VE) in der Isotopieverschiebung.

3.4.2 Masseneffekte in der ISV

Die Berücksichtigung der endlichen Masse des Kerns führt dazu, daß dieser jetzt nicht mehr der Schwerpunkt des Atoms ist. Aus diesem Grund muß die Energie der Elektronen um einen Betrag korrigiert werden, der der Bewegungsenergie des Kerns um den Schwerpunkt äquivalent ist. Diese Korrektur entspricht einer Energie ΔE_M, die der Rückstoßenergie des Kerns gleichkommt.

$$\Delta E_M = \left\langle \frac{1}{2M} \vec{p}_N^{\,2} \right\rangle \qquad (3\text{-}28)$$

M ist die Kernmasse und $\vec{p}_N$ ist der Kernimpuls. Da im Schwerpunktsystem

$$\vec{p}_N = -\sum_i \vec{p}_i \qquad (3\text{-}29)$$

gilt, mit $\vec{p}_i$ = Impuls des i-ten Elektrons, kann die Korrektur wie folgt mit der kinetischen Energie der Elektronen kombiniert werden. Man erhält:

$$\Delta E = \left\langle \frac{1}{2}\left(\frac{1}{m_e} + \frac{1}{M}\right)\sum_i \vec{p}_i^{\,2} \right\rangle + \left\langle \frac{1}{m}\sum_{i\neq j} \vec{p}_i \vec{p}_j \right\rangle . \qquad (3\text{-}30)$$

Die Größe $1/\mu = (1/m_e + 1/M)$ definiert die reduzierte Masse μ. Der erste Term in Gl. (3-30) wird als der normale oder auch Bohrscher Masseneffekt bezeichnet (NME), während der zweite Term den spezifischen Masseneffekt (SME) darstellt, der nur für Mehrelektronensysteme auftritt. Allein aus dieser Betrachtung erwarten wir, daß für Alkaliatome mit einer geringen Kopplung zwischen Valenzelektron und Edelgasrumpf der SME klein ist.

Da die reduzierten Massen von zwei Isotopen A und A' leicht unterschiedlich sind, führt dies zu einer ungleichen Verschiebung der Termenergien und in der Folge davon zu einer Differenz in der Übergangsfrequenz ν. Dieser Frequenzunterschied $\delta\nu_{NME}$ ist exakt berechenbar:

$$\delta\nu_{NME}^{AA'} = \nu^{A} - \nu^{A'} = \frac{m_e}{m_p} \cdot \frac{A-A'}{A \cdot A'} \nu = M_{NME} \cdot \frac{A-A'}{AA'} \qquad (3\text{-}31)$$

m_p steht für die Masse des Protons. Der NME ist immer positiv, d.h. die Absorptions- oder Emissionsfrequenz des schwereren Isotops wird immer zu größeren Frequenzen hin verschoben.

Der spezifische Masseneffekt wird durch Impulskorrelationen der Elektronen verursacht. Abhängig von der Art der Kopplung kann dieser sowohl positiv als auch negativ sein. Er zeigt jedoch dieselbe Abhängigkeit von der Kernmasse M wie der NME. Er ist, wie aus Gl. (3-30) zu ersehen ist, zu A-A'/A*A' proportional:

$$\delta\nu_{SME}^{AA'} = M_{SME} \cdot \frac{A-A'}{AA'} \quad . \qquad (3\text{-}32)$$

Daraus folgt unmittelbar, daß der Masseneffekt für schwere Isotope wie A^{-2} verschwindet, und somit für A 150 praktisch nur der Volumeneffekt gemessen wird. Bei leichten Kernen dagegen dominiert der Masseneffekt, und es wird schwierig, den Einfluß des Volumeneffekts nachzuweisen.
Der Faktor M_{SME} kann wie folgt dargestellt werden /16/:

$$M_{SME} = 2 \frac{m_e}{m_p} \cdot R \cdot K \quad , \qquad (3\text{-}33)$$

wobei R die Rydbergkonstante ist. Vintis k-Faktor stellt eine Linearkombination von Integralprodukten des folgenden Typs dar:

$$J(n\ell, n'\ell-1) = \int_0^\infty R_{n\ell}(r)\left\{\frac{dR_{n'\ell-1}}{dr} - \frac{(\ell-1)}{r} R_{n'\ell-1}(r)\right\} r^2 dr \qquad (3\text{-}34)$$

Der Radialanteil der elektronischen Wellenfunktion $R_{nl}(r)$ wird wie folgt normiert:

$$\int_0^\infty |R_{n\ell}(r)|^2 r^2 dr = 1 \quad .$$

Für Übergänge zwischen Niveaus, die in LS-Kopplung gut beschrieben werden können, ist M_{SME} nicht von der Quantenzahl J abhängig /16/. Hartree-Fock-Rechnungen des SME /17/ergeben für reine s→p- und s^2→sp-Übergänge im Vergleich zum NME kleine Werte. Dieses Ergebnis wird zumindest qualitativ durch experimentelle Ergebnisse bestätigt. Aus diesem Grund werden s→p- oder s^2→sp-Übergänge bevorzugt für ISV-Messungen verwendet.

Aufgrund empirischer Daten liegen grobe Abschätzungen für den SME dieser Übergangstypen vor /18/:

$$s \to p: \quad \delta\nu_{SME}^{AA'} \approx (0.3 \pm 0.9)\, \delta\nu_{NME}^{AA'} \qquad (3\text{-}35)$$

$$s^2 \to sp: \quad \delta\nu_{SME}^{AA'} \approx (0 \pm 0.5)\, \delta\nu_{NME}^{AA'} \quad . \qquad (3\text{-}36)$$

In Übergängen an denen d- oder f-Elektronen beteiligt sind, kann der SME ein Mehrfaches des NME betragen. Obwohl es mittlerweile Berechnungen des SME für Li, Na und K gibt /18,19/, die recht gut mit der 'Level-Shift' übereinstimmen, ist es bis heute nicht möglich, den SME für ein beliebiges Element eines beliebigen Übergangs verläßlich zu berechnen.

3.4.3 Volumeneffekt

Der Volumen- oder Feldeffekt wird durch die nicht vernachlässigbare Ausdehnung der Kernladung verursacht. Für die folgende Betrachtung stelle man sich einen homogen geladenen sphärischen Kern mit Radius R vor. Das elektrostatische Potential V außerhalb des Kerns ist dann $V = -Ze^2/r$. Innerhalb des Kerns ergibt sich jedoch eine Abweichung vom Coulombpotential. Dieser Sachverhalt wird in Abb. 1 für zwei Isotope mit den Massen A und A+1 und dem

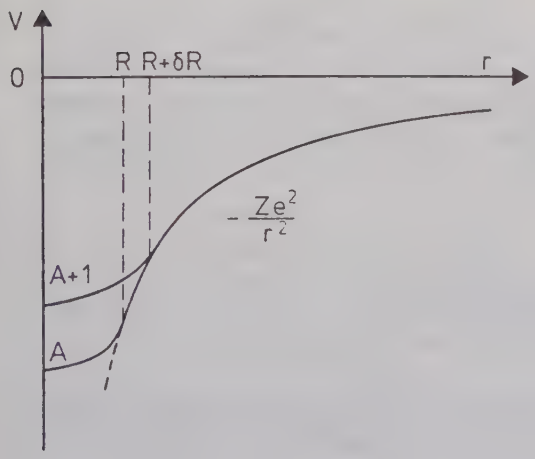

Abb. 1 Zur Erläuterung des VE in der ISV

Radiusunterschied δR dargestellt. Der kleinere Kern hat das größere elektrostatische Potential. Wie man sieht, verringert die Verteilung der Kernladung die Bindungsenergie der Elektronen, hervorgerufen durch ein Überlappen der Wellenfunktionen im Bereich des Kernvolumens.
Da die Änderungen der Kernladungsverteilungen nur in unmittelbarer Umgebung des Ursprungs stattfinden, wird dieser Effekt nur von s- oder in schweren Kernen auch von $p_{1/2}$-Elektronen wahrgenommen, d.h. von Elektronen, deren Wellenfunktionen im Kernbereich von Null verschieden sind. Eine Änderung der Kerndeformation hat ähnliche Auswirkungen auf die Bindungsenergie der Elektronen wie die Änderung des Kernvolumens.

Der Volumeneffekt $\delta\nu_i^{A,A'}(VE)$ ist mit der Änderung der Kernladungsverteilung wie folgt verknüpft /20/:

$$\delta\nu_i^{AA'}(VE) = E_i f(Z) \delta\langle r^2\rangle^{AA'} . \qquad (3\text{-}37)$$

Beiträge höherer Momente ($\delta\langle r^4\rangle, \delta\langle r^6\rangle, \ldots$) sind für leichte und mittelschwere Atome klein und wurden in dieser Darstellung nicht berücksichtigt /21/. Der elektronische Faktor E_i ist proportional zur Änderung der gesamten, nichtrelativistischen s-Elektronendichteänderung $\Delta|\psi_s(0)|^2$ am Kernort:

$$E_i = \frac{\pi a_o^3}{Z} \Delta|\psi_s(0)|_i^2 , \qquad (3\text{-}38)$$

wobei a_o der Bohrsche Radius ist. f(Z) berücksichtigt relativistische Korrekturen von $\Delta|\psi_s(0)|^2$ sowie Auswirkungen

der endlichen Kernladungsverteilung auf die Diracschen Wellenfunktionen der Elektronen:

$$f(z) = \frac{5/2\, A^{-1/3} C_{UNIF}^{AA'}}{r_o^2 (A-A')} \quad , \qquad (3\text{-}39)$$

wobei A = 1/2(A + A'), r_o = 1.20 fm und C_{unif} die theoretische Isotopieverschiebungskonstante für einen gleichförmig geladenen, kugelförmigen Atomkern mit Radius R = $r_o A^{1/3}$ bedeuten. Diese ISV-Konstante wurde von Babushkin /22/ für viele stabile Isotope berechnet.

3.4.4 Aufteilung der ISV in Massen- und Volumeneffekt

Bei Vernachlässigung magnetischer Beiträge höherer Ordnung setzt sich die ISV eines optischen Übergangs aus drei Anteilen gemäß Gl. (3-31, 3-32, 3-37) zusammen:

$$\delta\nu = \text{NME} + \text{SME} + \text{VE}$$

$$\delta\nu_i^{AA'} = \frac{A-A'}{A \cdot A'}\left(M_{SME}^i + M_{NME}^i\right) + E_i f(z)\, \delta\langle r^2\rangle \, . \qquad (3\text{-}40)$$

Für leichte Elemente (Z < 20) ist der Volumeneffekt im allgemeinen vernachlässigbar klein, jedoch in einzelnen Fällen nachweisbar, sobald mehr als drei Isotope zur Verfügung stehen. Man bildet dann zum Nachweis des VE für möglichst viele Isotopenpaare den folgenden Ausdruck:

$$\delta\nu/\text{NME} = (\text{NME+SME+VE})/\text{NME} = 1 + \text{SME/NME} + \text{VE/NME} \, . \qquad (3\text{-}41)$$

Unterschiedliche Werte für unterschiedliche Isotopenpaare zeigen das Vorhandensein eines Volumeneffekts an.
Für schwere Elemente ($Z > 60$) dominiert der Einfluß des Volumeneffekts über die Masseneffekte. Im mittelschweren Massenbereich (Xe, Ba, Cs) sind Massen- und Volumeneffekte von ungefähr gleicher Größenordnung (vgl. Kapitel 7).

Mit Hilfe von Gl. (3-40) und den gemessenen ISV-Werten kann $\delta\langle r^2\rangle$ berechnet werden. Zuvor müssen jedoch Massen- und Volumeneffekt getrennt werden.
Die Richtigkeit von Gl. (3-40) bzw. der ISV-Daten kann überprüft werden, sobald mindestens drei unabhängige ISV-Messungen in zwei optischen Übergängen eines Elementes vorliegen. Diese Überprüfung erfolgt über einen sogenannten King-Plot /23/. Mit Gl. (3-40) erhält man für zwei Übergänge i und j:

$$\delta\nu_i^{AA'} = \delta\nu_j^{AA'}\frac{E_i}{E_j} + \frac{A-A'}{AA'}\left\{M_i - M_j\frac{E_i}{E_j}\right\} \qquad (3\text{-}42)$$

mit $M_{i,j} = M_{i,j(SME)} + M_{i,j(NME)}$. Trägt man die modifizierte ISV

$$\left\{_i = \delta\nu_i^{AA'} \cdot \frac{A\cdot A'}{A-A'} \qquad (3\text{-}43)\right.$$

für alle möglichen Isotopenpaare A,A' gegen die entsprechend modifizierte ISV eines anderen Übergangs auf, so liegen alle Punkte auf einer Geraden mit der Steigung E_i/E_j und dem Achsenabschnitt $(M_i - M_jE_i/E_j)$. Setzt man den numerischen Wert für E_i/E_j in den Ausdruck für den Achsenabschnitt ein, so erhält man als Ergebnis die Summe der Masseneffekte. Ist

der Faktor M_i für einen Übergang bekannt, so kann man mit dieser Beziehung M_j für andere Übergänge berechnen.

Unter der Voraussetzung der Gültigkeit der Abschätzungen für den SME in s→p- und s^2→sp-Übergängen können nach Gl. (3-35, 3-36) jetzt auch SME anderer Übergänge berechnet werden. Durch Subtraktion der Masseneffekte von den experimentellen ISV erhält man schließlich den VE.

3.4.5 Bestimmung der Kernladungsradiusänderungen aus dem VE

Der Volumeneffekt ist ein Produkt zweier Faktoren, eines elektronischen Anteils $E_i f(Z)$ und eines Kernanteils $\delta\langle r^2\rangle$ (siehe Gl. (3-37)). Aus diesem Grund kann $\delta\langle r^2\rangle$ über eine Bestimmung des elektronischen Anteils ermittelt werden. f(Z) ist eine nach Gl. (3-39) berechenbare Funktion, die von Kerngrößen und vom verwendeten Kernmodell abhängig ist. Die Methoden, die zur Berechnung von E_i verwendet werden müssen, sind zum Teil empirischer Natur /20/.

Die Änderung der Elektronendichte am Kernort $\Delta|\psi(0)|^2_{ns\to np}$ läßt sich bei einem optischen Übergang vom Typ ns→np als Bruchteil der s-Elektronendichte am Kernort $|\psi(0)|^2_{ns}$ für den Anfangszustand ausdrücken:

$$\Delta|\psi(0)|^2_{ns\to np} = -\beta\,|\psi(0)|^2_{ns} \quad . \qquad (3\text{-}44)$$

Für diese Näherung wird ein eventueller (relativistischer) Beitrag der $p_{1/2}$-Elektronen vernachlässigt. Der Faktor ß steht für die Änderung der Abschirmung innerer, abgeschlossener Elektronenschalen unter dem Einfluß des s-Elektronensprungs. ß kann aus Hartree-Fock-Rechnungen mit Prozentgenauigkeit ermittelt werden /24,25/.

Für ein s-Elektron kann $|\psi(0)|^2_{ns}$ semiempirisch aus der magnetischen Hyperfeinstrukturaufspaltung des Atoms oder Ions berechnet werden, wie dies auch aus Gl. (3-19, 3-20, 3-21 und 3-23) ersichtlich ist.
Eine andere Möglichkeit der Berechnung gelingt über die Ionisierungsenergie des Atoms oder Ions /26/. Diese Energie legt die Bindungsenergie des s-Elektrons fest, über die dann mit Hilfe der Fermi-Segre-Goudsmit-Formel /9/ die Hyperfeinkonstante a_s berechnet werden kann.

3.4.6 Trennung des sphärischen Anteils vom Deformationsanteil des Volumeneffekts

Der in Gl. (3-37) dargestellte VE ist proportional zur $\delta\langle r^2\rangle$. Wie schon zuvor gesagt, führen zwei Effekte zu einer Kernladungsradiusänderung und tragen damit zur ISV in einer Spektrallinie bei. Im einzelnen handelt es sich dabei um den Beitrag eines kugelförmigen Kerns ("Liquid Drop") und der Deformation bei konstantem Volumen.

Die Änderung $\delta\langle r^2\rangle$ kann mit Vorhersagen des "Liquid Drop"-Modells verglichen werden. Die Änderung des mittleren Kernladungsradius eines inkompressiblen, gleichmäßig geladenen sphärischen Kerns läßt sich wie folgt schreiben
(mit $R_0 = 1.20 * A^{1/3}$):

$$\delta\langle r^2\rangle_{UNIF} = \frac{2}{5} R_0^2 \frac{\delta A}{A} \qquad (3\text{-}45)$$

Die experimentell bestimmten $\delta\langle r^2\rangle$-Werte deformierter Kerne lassen jedoch erheblich kleinere Werte erkennen, als dies durch das "Liquid Drop"-Modell vorhergesagt wird. Direkte Vergleiche von $\delta\langle r^2\rangle_{vol}$ mit $\delta\langle r^2\rangle_{unif}$ ergeben /27/:

$$\varrho = \frac{\delta\langle r^2\rangle_{VOL}}{\delta\langle r^2\rangle_{UNIF}} \approx 0.65(10) \qquad (3\text{-}46)$$

mit leichten Variationen für verschiedene Kernbereiche. Diese sogenannte ISV-Diskrepanz ϱ bedeutet letztlich, daß die Ausdehnung des Kerns beim Hinzufügen von Neutronen langsamer als angenommen erfolgt, was einer teilweisen Abschirmung der Protonenladung durch Neutronenströme entspricht.

Ist der Atomkern deformiert, so kann man seine Form wie folgt darstellen:

$$R(\theta,\phi) = \langle r_0\rangle \left\{1 + \sum_{\lambda,\mu} \alpha_{\lambda\mu}\, Y_\lambda^\mu(\theta,\phi)\right\} . \qquad (3\text{-}47)$$

In obiger Gleichung ist r_0 der mittlere Kernradius, $\alpha_{\lambda\mu}$ sind Deformationsparameter und $Y^\mu(\theta,\phi)$ Kugelfunktionen. Läßt man nur Quadrupoldeformationen zu ($\lambda = 2$), dann stellt obige Gl. (3-47) ein Ellipsoid dar. Im Koordinatensystem des Körpers ist es sinnvoll, die folgenden Parameter β und γ zu verwenden. Die mittlere quadratische Deformation $\langle\beta^2\rangle$ des Kerns ist dann wie folgt definiert:

$$\langle\beta^2\rangle = \sum_\mu \langle|\alpha_{2\mu}|^2\rangle . \qquad (3\text{-}49)$$

Der Asymmetrieparameter γ beschreibt dreiachsige Kernformen. Die Deformation eines gleichmäßig geladenen Kerns mit konstantem Volumen und konstanter Dichte kann wie folgt dargestellt werden:

$$\delta\langle r^2\rangle_{\beta}^{AA'} = \frac{5}{4\pi}\langle r_0^2\rangle^{AA'}\delta\langle\beta^2\rangle^{AA'} . \qquad (3\text{-}49)$$

Beiträge des Asymmetrieparameters γ sind in dieser Darstellung vernachlässigt worden.

Faßt man Volumen- und Deformationseffekte zusammen, so kann die mittlere quadratische Kernladungsradiusänderung wie folgt dargestellt werden:

$$\delta\langle r^2\rangle^{AA'} = 0.65\,\delta\langle r^2\rangle_{UNIF}^{AA'} + \frac{5}{4\pi}\langle r_0^2\rangle^{A}\delta\langle\beta^2\rangle^{AA'} . \qquad (3\text{-}50)$$

Diese Beziehung kann verwendet werden, um aus experimentellen $\delta\langle r^2\rangle$-Daten Aussagen über Deformationsbeiträge zu gewinnen.
Es sei noch erwähnt, daß diese Beschreibung nur für eine gleichmäßige ("Uniform") Ladungsverteilung mit scharfer Oberflächenbegrenzung gilt. Aus Elektronenstreudaten wissen wir jedoch, daß der Kern eine Hautdicke hat, die approximativ durch eine Fermi-II-Verteilung beschrieben wird. Die Frage des Beitrags der Hautdicke zu $\delta\langle r^2\rangle$ wird in /28/ diskutiert und von Gerhardt et al. auf die Kr-Isotope angewandt. Mit der traditionellen Formel nach Gl. (3-50) konnte das experimentelle Ergebnis bei den Kr-Isotopen nur mit einer starken N-Abhängigkeit des Volumendiskrepanz-Faktors oder unter Hinzunahme eines neuen Terms, der die Hautdickenänderung des Kerns berücksichtigt, zufriedenstellend beschrieben werden.

Ersetzt man ferner bei der Beschreibung des sphärischen Kerns und der sphärischen Änderungen das $A^{1/3}$-Gesetz durch

das bewährte Droplet-Modell /27/, so läßt sich der Volumendiskrepanz-Faktor vermeiden.
Nach /28/ läßt sich die Kernladungsradiusänderung unter Berücksichtigung von Deformations- und Hautdickenbeiträgen darstellen als:

$$\delta\langle r^2\rangle^{AA'} = \frac{3}{5}\left(C_A^2 - C_{A'}^2\right) + \frac{3}{4\pi} C_{\bar{A}}^2 \,\delta\langle\beta^2\rangle^{AA'} + \frac{14\pi^2}{5} a_{\bar{A}}^2 \left(\frac{\delta a}{a}\right)^{AA'} \qquad (3\text{-}51)$$

mit C = Halbwertsradius der Fermi-II-Funktion
und $a_{\bar{A}}$ = Hautdickenparameter
$\bar{A}$ = 1/2(a + A').

REFERENZEN

/1/ A. Michelson: Phil.Mag. **31**, 338 (1891)
/2/ C. Fabry, A. Perot: Ann.Chim. et Phys. **12**, 459 (1897)
/3/ O. Lummer, L. Gehrke: Ann.Phys. **10**, 457 (1903)
/4/ W. Pauli: Naturwissenschaften **12**, 74 (1924)
/5/ H.B.G. Casimir: On the Interaction between Atomic Nuclei and Electrons, New Edition: W.H. Freeman Comp., San Francisco (1963)
/6/ W.L. Faust, M.N. McDermott: Phys.Rev. **123**, 198 (1961)
/7/ H.C. Urey, F.G. Brickwedde, G.M. Murphy: Phys.Rev. **39**, 164 (1932)
/8/ I.I. Sobelman: Introduction to the Theory of Hyperfine-structure of Free Atoms, Pergamon Press, Oxford, New York (1972)
/9/ H. Kopfermann: Kernmomente, Akademische Verlagsgesellschaft, Frankfurt/Main (1959)
/10/ C. Schwartz: Phys.Rev. **97**, 380 (1955)
/11/ P.G.H. Sandars, J. Beck: Proc.Roy.Soc. **A 289**, 97 (1965)

/12/ I. Lindgren, A. Rosen: Case Studies in Atomic Physics **4** 197 (1973)
/13/ L. Armstrong: Theory of Hyperfinestructure, Wiley and Sons, New York (1971)
/14/ Y. Bordarier, B.R. Judd, M. Klapisch: Proc.Roy.Soc. **A 289**, 81 (1965)
/15/ H.M. Foley: Atomic Physics, **Vol. 1**, ed. by Bederson/ Cohen/Pichanik, Plenum Press, New York, 509 (1969)
/16/ J.P. Vinti: Phys.Rev **56**, 1120 (1939)
/17/ J. Bauche: J.Physique **35**, 19 (1974)
/18/ A.M. Martensson, S. Salomonson: J.Phys. **B 15**, 2115 (82)
/19/ E. Lindroth, A.M. Martensson-Pendrill: Z.Physik **A 309**, 277 (1983)
/20/ K. Heilig, A. Steudel: Atom.Data, Nuclear Data Tables **14**, 613 (1974),
/21/ P.L. Lee, F. Boehm: Phys.Rev **C 8**, 819 (1973)
/22/ F.A. Babushkin: Sov.Phys. JETP **17**, 1118 (1963)
/23/ W.H. King: J.Opt.Soc.Am **53**, 638 (1963)
/24/ M. Wilson: J.Phys. **B 5**, 218 (1972)
/25/ M.A. Coulthard: J.Phys. **B 6**, 23 (1973)
/26/ B.G. Wybourne: Spectroscopic Properties of the Rare Earths, Interscience, New York (1965)
/27/ A.R. Bodmer: Nucl.Phys. **9**, 371 (1958)
/28/ H. Gerhardt, E. Matthias, H. Rinneberg, F. Schneider, A. Timmermann, R. Wenz, P.J. West: Z.Physik **A 292**, 7 (1979)

4. EXPERIMENTELLE VERFAHREN

4.1 LASERSPEKTROMETER
4.1.1 Farbstofflaser
4.1.2 Frequenzstabilisierung von Farbstofflasern
4.1.3 Grobeinstellung der Wellenlänge
4.1.4 Frequenzeichung und computergesteuerte Durchstimmung des Farbstofflasers

4.2 SPEKTROSKOPISCHE METHODE
4.2.1 Sättigungsspektroskopie
4.2.2 Maßnahmen zur Verbesserung des Signal/Rausch-Verhältnisses
4.2.2.1 Rauschquelle "Laser"
4.2.2.2 Rauschquelle "Streulicht"
4.2.2.3 Rauschquelle "Strahlführung"
4.2.2.4 Rauschquelle "Gasentladung"
4.2.3 Nachweisempfindlichkeit bei der Sättigungsspektroskopie an Xenonisotopen

4.3 ZELLENPRÄPARATION
4.3.1 Gasentladungszellen
4.3.2 Gasentladungstypen
4.3.3 Vakuumpumpstand
4.3.4 Präparation radioaktiver Xenonisotope
4.3.4.1 Allgemeines
4.3.4.2 Gastransfer in die Meßzelle
4.3.4.3 Einstellung des Betriebsdrucks
4.3.4.4 Abschirmung der radioaktiven Strahlung

4. EXPERIMENTELLE VERFAHREN

Im Verlaufe der experimentellen Arbeiten mußte eine Reihe von Problemlösungen erarbeitet werden. Drei dieser Lösungen verdienen besondere Aufmerksamkeit und sind deshalb in den folgenden drei Unterkapiteln näher beschrieben.

Der erste Teil beschreibt die experimentellen Maßnahmen, die notwendig waren, um aus dem kommerziellen Lasersystem (SP 171-19/580A) ein computergesteuertes Laserspektrometer aufzubauen, das für hochauflösende Messungen im gesamten sichtbaren Spektralbereich geeignet ist. Die herausragende Besonderheit dieses Systems ist die Möglichkeit, Spektren zu mitteln und damit die Nachweisempfindlichkeit entscheidend zu verbessern. Neben den Messungen für diese Arbeit wurden mit demselben Spektrometer ISV- und HFS-Messungen an einigen weiteren Elementen erfolgreich durchgeführt /1,2,3,4/.

Im zweiten Teil werden Doppler-freie spektroskopische Methoden diskutiert und die Grundlagen der für diese Arbeit verwendeten Sättigungsspektroskopie skizziert. Im Mittelpunkt stehen jedoch die experimentellen Anstrengungen, die unternommen wurden, um die Nachweisempfindlichkeit dieses Verfahrens zu steigern.

Insbesondere für die Untersuchungen an radioaktiven Proben spielen präparative Methoden eine wichtige Rolle. Sie werden daher im letzten Teil dieses Kapitels in ihren Grundzügen dargestellt. Sie bilden die Grundlage für die Untersuchung weiterer radioaktiver Isotope und Isomere.

4.1 LASERSPEKTROMETER

Kontinuierlich (cw) arbeitende, im gelb-roten (540 bis 650 nm) Spektralbereich abstimmbare Farbstofflaser gibt es schon seit mehr als einem Jahrzehnt /5/. Aufgrund ihrer Abstimmbarkeit und ihrer schmalen Linienbreite sind sie für viele Spektroskopiker zu einem unentbehrlichen Hilfsmittel geworden. Das Arbeiten in diesem Wellenlängenbereich ist relativ einfach, da sowohl die Farbstoffe (Rh 110, Rh 6G, Rh B, DCM) als auch die Pumplichtquelle (Argonionenlaser) leistungsfähig und langlebig sind.

Im blau-grünen (400 bis 540 nm) Spektralbereich sind die Voraussetzungen weniger günstig. Im Vergleich zu den Rhodamin-Farbstoffen hat man es hier stets mit schwachverstärkenden (Stilben 1, Stilben 3) oder gar instabilen Farbstoffen (Coumarine) zu tun. Die zum optischen Pumpen dieser Farbstoffe notwendigen UV-Pumplaser sind trotz einer bis an die technologischen Grenzen gehenden Betriebsweise in ihren Ausgangsleistungen auf Werte um 3 W begrenzt.

Auf der anderen Seite gibt es eine Vielzahl optischer Übergänge in diesem Spektralbereich, die mit solchen Lasersystemen untersucht werden können. Ein besonderer Reiz liegt in der Möglichkeit, hochauflösende laserspektroskopische Methoden im blauen Wellenlängenbereich anzuwenden.

4.1.1 Farbstofflaser

Kernstück des Laserspektrometers ist ein Single-Frequency-Farbstofflaser der Firma Spectra-Physics (Modell 580A), der von einem UV-Argonionenlaser (Modell 171-19) gepumpt wird. Obwohl der Resonator des Farbstofflasers V-förmig gefaltet ist, spricht man von einem linearen System, da es im Gegensatz zum Ringlaser /6/ zur Ausbildung stehender Wellen im Resonator kommt.

Mit dem serienmäßigen Laser kann man ca. 3 mW Ausgangsleistung über einen Durchstimmbereich von ungefähr 3 GHz erzielen. Höhere Leistungen sind im Single-Frequency-Betrieb leider nicht zu erreichen. Schuld daran ist im wesentlichen ein Effekt, der unter der Bezeichnung "Spatial-Hole-Burning" bekannt ist /7/. Durch die stehenden Laserlichtwellen entstehen im aktiven Medium (Farbstoffstrahl) Bereiche mit hoher Inversion, die nicht oder nur sehr wenig zur Verstärkung der oszillierenden Mode beitragen. Diese Bereiche sind in der Lage, frequenzmäßig eng benachbarte Resonatormoden zur Oszillation zu bringen. Diese sogenannten Nebenmoden werden von den verwendeten Etalons aufgrund ihrer Durchlaßcharakteristika nicht ausreichend unterdrückt. Nur über eine Anhebung der Laserschwelle, zum Beispiel durch starkes Kippen des 75-GHz Etalons, läßt sich ein stabiler Single-Frequency-Betrieb erreichen. Die dadurch verursachten Verluste führen zu niedrigen Ausgangsleistungen. Der störende Einfluß des "Spatial-Hole-Burning" kann auch durch Veränderungen am Laserresonator vermindert werden. Dazu bringt man den Endspiegel des Farbstofflasers möglichst nahe

an den Farbstoff-Jet. Damit erreicht man, daß der Frequenzabstand der störenden Nebenmoden ($\Delta\nu = c/4r$) soweit vergrößert wird, daß sie in den selektierenden Bereich des Etalons fallen und jetzt ohne Kippverluste unterdrückt werden können. Im vorliegenden Fall konnte dies durch Verwendung eines Endspiegels mit Krümmungsradius r = 10 mm anstelle des serienmäßigen Spiegels mit r = 50 mm zuverlässig erreicht werden.

Zur besseren Grobselektion der Wellenlänge des Farbstofflasers wurde das serienmäßige Keil-Interferenzfilter durch ein doppelbrechendes Filter (3-Platten BRF) ersetzt /8/. Wegen der jetzt höheren Gesamtselektivität konnte im Single-Frequency-Betrieb auf das zweite Etalon (FSR 900 GHz) verzichtet werden.

Mit dem so veränderten Farbstofflaser (siehe Abb. 1) lassen sich mit dem Farbstoff STILBEN 3 bei UV- Pumpleistungen von 2 W Ausgangsleistungen von 10 mW bis 20 mW in einem Spektralbereich von 420 nm bis 470 nm erzielen. Für sättigungsspektroskopische Untersuchungen ist diese Leistung im allgemeinen ausreichend. Die Leistungssteigerung ermöglicht gleichzeitig eine wesentlich günstigere Auslegung des optischen Aufbaus.

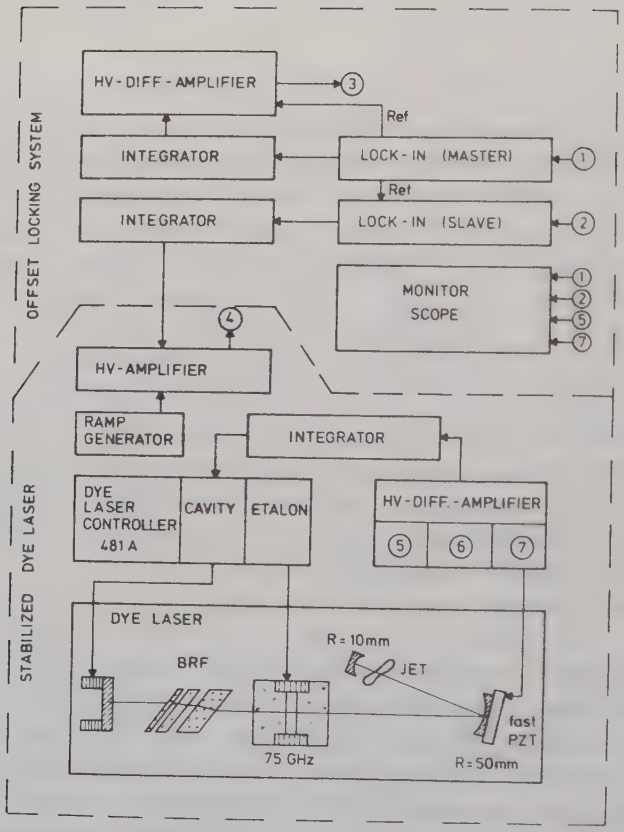

Abb. 1 Elektronisches Blockschaltbild der Frequenzstabilisierung und der Frequenzeichung des Farbstofflasers. Alle optischen Komponenten des modifizierten Farbstofflasers sind schematisch dargestellt. Die Anschlüsse 3, 4 und 6 führen zur PZT des Koppelinterferometers, zur PZT des Farbstofflaserstabilisierungsresonators, bzw. zum Monitorausgang des HV-Differenzverstärkers.

4.1.2 Frequenzstabilisierung von Farbstofflasern

In dem verwendeten Farbstofflaser dient ein im Querschnitt rechteckiger, ca. 0.2 x 5.0 mm großer Farbstoffstrahl (Jet) als aktives Lasermedium. Ein Pumpsystem sorgt für den ständigen Umlauf der Farbstofflösung. Gegenüber den früher verwendeten Küvetten-Farbstofflasern können Laser mit "Dye-Jet", da sie keine Fenster besitzen, problemlos mit wesentlich höheren Lichtleistungen oder mit UV-Licht gepumpt werden. Die passive Frequenzstabilität ist jedoch um ca. eine Größenordnung geringer.

Durch entsprechende konstruktive Maßnahmen an der Düse gelingt es, die optische Qualität, insbesondere die Oberflächenbeschaffenheit dieses im Laserresonator befindlichen Farbstoffstrahls zu optimieren. Oberflächenschwingungen und Dichteänderungen des Farbstoffstrahls, Temperatur-und Luftdruckschwankungen, Vibrationen des Resonators usw. führen letztlich zu einer Änderung der optischen Weglänge im Laserresonator. In der Folge ergeben sich typische Schwankungen der Emissionsfrequenz des Farbstofflasers von 10 MHz bis 200 MHz.

Für hochauflösende spektroskopische Untersuchungen sind solche Laser nicht verwendbar, da die natürlichen Linienbreiten vieler optischer Übergänge nur wenige MHz betragen. Um die Bandbreite solcher Farbstofflaser auf Werte um oder unter 1 MHz zu verringern, sind neben der passiven Stabilisierung aktive Maßnahmen unumgänglich.

Zur aktiven Frequenzstabilisierung benötigt man eine Vorrichtung, die es gestattet, die Frequenzabweichung des Farbstofflasers von einer vorgegebenen Frequenz festzustellen und die notwendige Frequenzkorrektur am Laser

durchzuführen. Als Frequenzdiskriminatoren für den optischen Bereich eignen sich Fabry-Perot-Interferometer mit hinreichend großer Finesse. Mit breitbandigen (400 bis 700 nm) und hochreflektierenden ($R \approx 98$ %) Spiegeln in konfokaler Anordnung lassen sich Halbwertsbreiten der Interferometertransmission von 10 bis 20 MHz realisieren. Durch entsprechende konstruktive Maßnahmen (massive und temperaturstabile Spiegelabstandshalter, evakuiertes Resonatorgehäuse) wird eine hohe Frequenzstabilität gewährleistet.

Die Frequenzstabilisierung des Farbstofflasers geschieht über diese Interferometer und ist zum Beispiel von Timmermann /9/ ausführlich beschrieben.

Kritische Bauelemente in den Regelkreisen einer Laserfrequenzstabilisierung sind die Piezokeramiken. Sie besitzen je nach Bauform und Art der Montage Eigenresonanzen, die die erreichbare Regelgeschwindigkeit und Bandbreite begrenzen. Durch eine den Bauteilen und dem Laser angepaßte Wahl der Verstärkungskurve der Regelverstärker sowie durch schwingungsdämpfende Maßnahmen am Laserresonator konnten die Frequenzschwankungen des Farbstofflasers auf Werte < 1 MHz reduziert werden /10/.

Befestigt man einen der beiden Interferometerspiegel auf einer Piezokeramik, so kann man durch Anlegen einer Spannung eine Ausdehnung der Keramik bewirken. Dadurch werden die Transmissionsmoden des Interferometers verschoben, d. h. die Resonanzfrequenz des Interferometers ist eine Funktion der Spannung an der Piezokeramik. Im stabilisierten Zustand bewirkt eine Veränderung der Interferometerfrequenz eine Veränderung der Laserfrequenz. Der Farbstofflaser ist auf diese Weise über ca. 3 GHz elektronisch durchstimmbar.

Derartige Laser-Stabilisierungen sind inzwischen kommerziell erhältlich, z. B. Modell 388 von Spectra-Physics.

4.1.3 Grobeinstellung der Wellenlänge

Im Vergleich zu den typischen Durchstimmbereichen von Farbstofflasern von etwa 50 nm ist die Linienbreite eines atomaren Übergangs sehr klein. Typische Werte für Doppler-verbreiterte Übergänge sind 10^{-3} nm. Das Auffinden einer bestimmten Absorptionslinie ist aufgrund dieser kleinen Linienbreiten keineswegs ein triviales Problem.
Im Verlaufe dieser Arbeit wurden zwei Verfahren erprobt, die es gestatten, auch unter schwierigeren experimentellen Bedingungen schmale Absorptionslinien zuverlässig zu finden.

A) Ausgangspunkt für die erste Methode ist ein Farbstofflaser, dessen Linienbreite ungefähr einer Doppler-verbreiterten Absorptionslinie entspricht. Dazu werden alle Etalons aus dem Resonator des Lasers entfernt. Mit diesem jetzt breitbandigen Laser ($\Delta\nu \approx 20$ GHz) versucht man, die Resonanzfluoreszenz der zu untersuchenden Atome in einer Resonanzzelle mit dem bloßen Auge durch grobes Durchstimmen der Wellenlänge zu entdecken.

   Ist die Fluoreszenz gefunden, müssen die Etalons wieder in den Resonator eingebaut und justiert werden. Nach dem Einbau der Etalons ist die Fluoreszenz im allgemeinen nicht mehr sichtbar, da der jetzt sehr schmalbandige Laser ($\Delta\nu < 10$ MHz) je nach Stellung der Etalons außerhalb der Absorptionslinie emittiert. Die Piezospannung am Etalon wird so lange verändert, bis die Fluoreszenz wieder sichtbar wird.

Ist dies nicht möglich, so wurde beim Einbau der Etalons die Grobeinstellung der Wellenlänge des Farbstofflasers um mehr als den elektronischen Durchstimmbereich geändert. In diesem Fall muß der gesamte eben geschilderte Vorgang noch einmal wiederholt werden.

B) Ein zuverlässiges Suchverfahren, das selbst bei Linien mit kleiner Übergangswahrscheinlichkeit oder radioaktiven Isotopengemischen einsetzbar ist, wird im folgenden beschrieben:

Der Farbstofflaser befindet sich bereits im Single-Frequency-Betrieb und in der Nähe der gesuchten Absorptionslinie (Wellenlänge wird mit 0.25 m-Monochromator oder Interferenzfilter eingestellt).
Außerdem wird vorausgesetzt, daß ein justierter sättigungsspektroskopischer Aufbau einschließlich Nachweiselektronik zur Verfügung steht /Abb. 2/.

Beim Suchvorgang wird der Laser elektronisch um ca. 0.1 nm schnell durchgestimmt und dabei nach dem Sättigungssignal gesucht. Wird das Signal nicht entdeckt (Lock-In-Verstärker), so wird die Grobeinstellung des Farbstofflasers um 0.1 nm verändert und der Laser erneut elektronisch durchgestimmt.

Die Schnelligkeit, mit der ein bestimmter Übergang gefunden werden kann, hängt natürlich von der Genauigkeit der Grobeinstellung der Wellenlänge ab. Außerdem muß gewährleistet sein, daß Probe- und Sättigungsstrahl ausreichend innerhalb der Zelle überlappen.
Eine komfortable, jedoch auch teuere Alternative zu den eben beschriebenen Methoden bieten sogenannte WAVEMETER /11/. Kommerziell erhältliche Geräte /BURLEIGH/ erlauben es, die Wellenlänge eines Lasers auf ca. 1 GHz genau einzustellen.

4.1.4 Frequenzeichung und computergesteuerte Durchstimmung des Farbstofflasers

Doppler-freie Spektren atomarer oder molekularer optischer Übergänge können im Bereich einiger 100 MHz eine Vielzahl von Linien aufweisen. Zur exakten Auswertung solcher Spektren ist eine möglichst genaue Zuordnung zwischen Meßwert und Laserfrequenz notwendig. Hierzu sind verschiedene Verfahren entwickelt worden:

A) Die Verwendung von Fabry-Perots mit kleinem freien Spektralbereich ($\Delta\nu = c/2L$) als Frequenzmarkengeber ist die einfachste Möglichkeit, die Frequenzachse eines Spektrums zu eichen. Nachteilig ist die Unhandlichkeit ($L \approx 1$ m) solcher Geräte, insbesondere wenn der FSR 100 MHz sein soll. Der Verlauf der Frequenz zwischen zwei Marken ist nur näherungsweise bestimmbar. Frequenzlagen von Spektrallinien können bestenfalls auf 5 MHz genau bestimmt werden.

B) Sigmameter /12/ gestatten die absolute Frequenzbestimmung gepulster und kontinuierlicher Laserlichtquellen. Dies ist mit einer Genauigkeit von ca. 6 MHz möglich.

C) Messung von Beatfrequenzen zwischen zwei Farbstofflasern, wobei einer der Laser durchgestimmt wird /13/. Realisierbar sind Durchstimmbereiche von mehreren GHz. Nachteilig sind die hohen Kosten für zwei komplette Farbstofflaser.

D) Offset-Locking-Verfahren:
Es existieren verschiedene Varianten dieses Verfahrens /14/. Allen gemeinsam ist jedoch, daß der zur Frequenzstabilisierung und Durchstimmung des Farbstofflasers notwendige Resonator von einem frequenzstabilen und mit Methoden der Hochfrequenztechnik durchstimmbaren Laser kontrolliert wird. Die einzelnen Methoden unterscheiden sich nur in der Art und Weise, wie die Kontrolle geschieht.

Eine Möglichkeit der Durchstimmung besteht darin, das Licht eines stabilisierten He-Ne-Lasers (meist J_2-stabilisiert) mit einer schnellen Pockelszelle zu modulieren (ω = 1 MHz bis 500 MHz) /15/. Die durch die Modulation entstehenden Seitenbänder sind um die Modulationsfrequenz verschoben. Stabilisiert man den Resonator auf eines der Seitenbänder (Lock-In-Stabilisierung auf das Transmissionsmaximum des Interferometers), wird der Resonator über eine Änderung der Modulationsfrequenz durchstimmbar.

Wir haben uns für die Methode des Offset-Locking entschieden, die uns im Vergleich zu den übrigen Methoden als Optimum für die zu lösenden Aufgaben erschien /16/. Die wesentlichen Bestandteile sollen im folgenden beschrieben werden:

1) Ein auf eine $^{129}J_2$ - Molekülresonanz ($B^3\Pi^+_{ou} \rightarrow X^1\Sigma^+_{og}$) stabilisierter He-Ne-Laser sichert als Wellenlängenstandard (Frequenzstabilität $\pm$ 10 KHz) die Reproduzierbarkeit der Farbstofflaserfrequenz. Zusammen mit einer frequenzsynchronen Meßdatenerfassung ist dies die Voraussetzung für das zeitliche Mitteln von Spektren.

2) Ein abstimmbarer Single-Frequency- He-Ne-Laser ist an einen zweiten J_2 - stabilisierten He-Ne-Laser angekoppelt (Offset-Locked). Die Mischfrequenz der beiden He-Ne-Laser wird mit der Frequenz eines Synthesizers verglichen. Mittels einer Regelschaltung wird dann die Frequenz des durchstimmbaren He-Ne-Lasers so lange verändert, bis sich die gewünschte Offset-Frequenz einstellt. Verändert man jetzt die Synthesizerfrequenz (30 MHz bis 800 MHz), so wird auch der durchstimmbare Laser um diese Frequenz verstimmt.

3) Mit dem He-Ne-Offset-Laser wird ein Fabry-Perot-Interferometer durchgestimmt. An dasselbe Interferometer ist über eine Lock-In-Stabilisierung der stabilisierte Farbstofflaser angekoppelt. Eine Frequenzänderung am He-Ne-Laser um $\Delta\nu_{He\,Ne}$ bewirkt eine Frequenzänderung des Farbstofflasers um:

$$\Delta\nu_{DYE} = \frac{\lambda_{He\text{-}Ne}}{\lambda_{DYE}} \cdot \Delta\nu_{He\text{-}Ne} \quad .$$

Durch die oben beschriebenen Techniken werden die sonst beim Durchstimmen von Farbstofflasern üblichen Probleme wie Frequenzdriften und Nichtlinearitäten vermieden.
Sowohl der Synthesizer als auch der durchstimmbare He-Ne-Laser sind in ihrer Durchstimmbarkeit begrenzt (ca. 1 GHz). Dennoch ist es möglich, dieses Verfahren im Prinzip über unbegrenzte Frequenzbereiche anzuwenden. Die einzige Voraussetzung ist, daß der Durchstimmbereich des He-Ne-Lasers etwas größer ist als der FSR des zur Kopplung verwendeten Interferometers. Das Verfahren ist einfach:
Ist man am Ende des Durchstimmbereichs des He-Ne-Lasers angekommen, wird der Farbstofflaser abgekoppelt. Durch

entsprechende Aneinanderreihung von Teilspektren lassen sich damit auch Spektren mit großer Frequenzaufspaltung vermessen.

4) Die Farbstofflaserfrequenz wird letztlich von dem unter 2) erwähnten computergesteuerten Synthesizer festgelegt oder verändert. Der Computer registriert frequenzsynchron die anfallenden Meßdaten und speichert sie für die weitere Auswertung. Dieses Verfahren ermöglicht das zeitliche Mitteln von beliebigen Spektren und erlaubt auf diese Weise eine Steigerung des Signal/Rausch-Verhältnisses um etwa eine Größenordnung. Dies war ausschlaggebend für die Bestimmung der Hyperfeinstruktur und Isotopieverschiebung der radioaktiven Xenonisotope $^{127,133}Xe$ und der Isotopieverschiebung zwischen den seltenen Edelgasisotopen $^{36,38}Ar$ und $^{78,80}Kr$ sowie $^{124,126}Xe$.
Die praktische Durchführbarkeit des zeitlichen Mittelns von Spektren wird durch die Durchstimmqualität des Farbstofflasers begrenzt. Ringlaser bieten in dieser Hinsicht wesentlich bessere Eigenschaften, so daß eine weitere Steigerung des Signal/Rausch-Verhältnisses möglich sein sollte. Meß- und Hilfsprogramme für den Computer wurden im Rahmen einer Diplomarbeit erstellt /3/.

4.2 SPEKTROSKOPISCHE METHODE

Isotopieverschiebungen in optischen Übergängen mittelschwerer Elemente ($A \approx 130$) sind im Vergleich zur jeweiligen Doppler-Breite klein, d.h. mit klassischen interferometrischen Methoden normalerweise nicht mehr meßbar. Nur die Verwendung massenseparierter Isotope führt in speziellen Fällen noch zum Erfolg /16,17/ .

Möchte man solche Untersuchungen auf radioaktive Isotope oder deren Isomere ausdehnen, so ist man in der Regel an ein in der Zusammensetzung unbekanntes Isotopengemisch gebunden. Dann benötigt man eine Methode, die den Doppler-Effekt entweder ausnützt oder ihn stark reduziert und Spektrallinien in ihrer natürlichen Breite zeigt.
Abb. 7, Kapitel 6 zeigt ein Beispiel für ein solches Doppler-freies Spektrum.

Fast alle Doppler-freien Methoden verdanken ihre Entstehung oder Anwendbarkeit durchstimmbaren Farbstofflasern /5/ . Nur mit diesen Lasern ist es möglich, über einen weiten Wellenlängenbereich (ca. 300 nm bis 1800 nm) beliebige optische Übergänge anzuregen. Für diese Untersuchungen wurden in den letzten zehn Jahren eine Vielzahl von Methoden entwickelt mit dem Ziel größter Nachweisempfindlichkeit bei gleichzeitig größtmöglicher Unterdrückung der Doppler-Breite.

Die für Isotopieverschiebungsmessungen wichtigsten Verfahren sind:

- Fluoreszenzanregung am kollimierten Atomstrahl /18/
- Kolineare Anregung am schnellen Ionenstrahl /19/
- Zwei-Photonenspektroskopie /20/
- Sättigungsspektroskopie (gesättigte Absorption) /21/
- Polarisationsspektroskopie /22/
- Intermodulierte Fluoreszenzspektroskopie /23/
- Interferenzspektroskopie /24,25/

Jede dieser Methoden hat ihre spezifischen Vor- und Nachteile, so daß man nicht von einer "besten" Methode sprechen kann. Es hängt vielmehr entscheidend von der Probenpräpara-

tion und von der zur Verfügung stehenden Ausrüstung ab, für welches Verfahren man sich letztlich entscheidet.

Die ISV- und HFS-Messungen dieser Arbeit wurden mit Hilfe der Sättigungsspektroskopie durchgeführt, da sie am besten die Anforderung dieses Experiments erfüllen konnte:

- Messungen müssen in abgeschlossenen Zellen durchgeführt werden, da teuere angereicherte oder radioaktive Isotope verwendet werden. Atomstrahlenexperimente kommen daher nicht in Frage.

- Die Niveaus, von denen aus die Absorptionsmessungen stattfinden sollen, müssen erst über eine Gasentladung bevölkert werden. Die geringe Besetzungsdichte dieser Niveaus sowie störende Fluoreszenz anderer Niveaus schließen eine Anwendung der Zwei-Photonenspektroskopie oder der intermodulierten Fluoreszenz aus.

- Die bei der Polarisationsspektroskopie auftretenden dispersiven Kurvenformen machen eine genaue Bestimmung der Frequenzlagen problematisch. Typische Abweichungen liegen bei 1 bis 2 MHz .

Nicht zuletzt ist die Sättigungsspektroskopie vom experimentellen Aufwand und von der Auswertung der Spektren her gesehen eine relativ einfache Methode. Durch verschiedene , in den folgenden Abschnitten geschilderte Maßnahmen ist es gelungen, die Empfindlichkeit dieser klassischen Doppler-freien Methode wesentlich zu steigern. Zunächst sollen jedoch die Grundlagen der gesättigten Absorptionsspektroskopie (Sättigungsspektroskopie) dargestellt werden. Für ausführliche Darstellungen muß auf die Literatur verwiesen werden.

4.2.1 Sättigungsspektroskopie

Mit diesem Verfahren können Strukturen optischer Übergänge sichtbar gemacht werden, deren Abstände kleiner sind als die Doppler-Breite des Übergangs und deren Breite im Idealfall der natürlichen Linienbreite entspricht. Gemessen wird die Absorption der Geschwindigkeitsgruppe des Atomensembles, deren Geschwindigkeitskomponente senkrecht auf der Laserstrahlrichtung steht, d.h. für die $\vec{k} \cdot \vec{v} = 0$ ist.

Dazu muß der verwendete Laser

- schmalbandig ($\Delta\nu_L \ll 1/\gamma$)
- von ausreichender Intensität ($I_L \gtrsim I_s = 2B_{ik}\varrho(\nu)/\pi\gamma R$)
- und resonant mit dem atomaren Übergang sein ($\Delta E_{ik} = h\nu_{ik}$)

mit
- $\Delta\nu_L$: Frequenzjitter des Lasers
- γ : Lebensdauer der Niveaus
- I_s : Sättigungsintensität, bei der Besetzungsdifferenz auf die Hälfte abnimmt und die Linienbreite um Faktor $\sqrt{2}$ zunimmt. Diese Sättigungsintensität wurde in Kap. 5.6 zu $\approx$ 1 mW/mm^2 bestimmt.
- B_{ik} : Einsteinkoeffizient
- $\varrho(\nu)$: spektraler Strahlungsdichte
- R : Gesamtrelaxationsrate
- ΔE_{ik} : Energiedifferenz zwischen Niveau i und k
- ν_{ik} : Übergangsfrequenz.

Zum Verständnis der Sättigungsspektroskopie ist es wichtig, eine Doppler-verbreiterte Absorptionslinie als Summe oder Einhüllende vieler einzelner Absorptionslinien aufzufassen. Die Frequenz dieser einzelnen Linien wird dabei durch die

Geschwindigkeit der Atome relativ zur Laserstrahlrichtung $\vec{k}$ bestimmt (Doppler-Effekt):

$$\nu = \nu_0 \left(1 \pm \frac{\vec{k} \cdot \vec{v}}{c}\right)$$

mit ν_0 : Frequenz ruhender Atome
c : Lichtgeschwindigkeit.

Mit einem intensiven und resonanten Einfrequenzlaser ist man in der Lage, gezielt eine bestimmte Geschwindigkeitsklasse zu sättigen, d.h. die Besetzungsdichten der beteiligten Niveaus zu ändern. Betrachtet man das untere Niveau, so spricht man von einem sogenannten Bennet-Hole. Das Dopplerverbreiterte Absorptionsprofil hat an dieser Stelle ein "Loch", dessen Breite ungefähr der natürlichen Linienbreite entspricht. Diese Verminderung der Absorption kann mit einem zweiten über das Doppler-Profil durchstimmbaren Laser nachgewiesen werden.

Für die Sättigungsspektroskopie wird die experimentelle Anordnung nach Abb. 5, Kap. 4.2.2.1) benutzt.

Zwei gegenläufige Laserstrahlen (I_{sat} und I_{prob}) gleicher Frequenz jedoch wesentlich unterschiedlicher Lichtintensität ($I_{sat} \approx 10 \times I_{prob}$) kreuzen sich unter einem möglichst kleinen Winkel im zu untersuchenden Gas (Zelle). Für $\nu \neq \nu_0$ wechselwirken beide Strahlen mit unterschiedlichen Geschwindigkeitsklassen des Gases, da die Strahlen entgegengesetzte Ausbreitungsrichtungen haben. Der Probestrahl ist in diesem Fall nicht in der Lage, die vom

Sättigungsstrahl verursachte Sättigung des Übergangs nachzuweisen.
Verändert man die Frequenz des Lasers in Richtung ν_0, so kann für $\nu = \nu_0 \pm \Delta\nu_{nat}$ der Probenstrahl die durch I_{sat} verursachte Sättigung als erhöhte Transmission feststellen. Beim Durchstimmen des Lasers über die gesamte Dopplerkurve detektiert der Probenstrahl eine Doppler-verbreiterte Absorptionskurve, die genau in der Mitte ($\nu = \nu_0$) eine Erhöhung von einigen Prozent aufweist, deren Breite wegen Sättigungsverbreiterung und Kreuzungswinkel ($\alpha \neq 0$) jedoch immer größer als die natürliche Linienbreite ist (siehe Abb. 2).

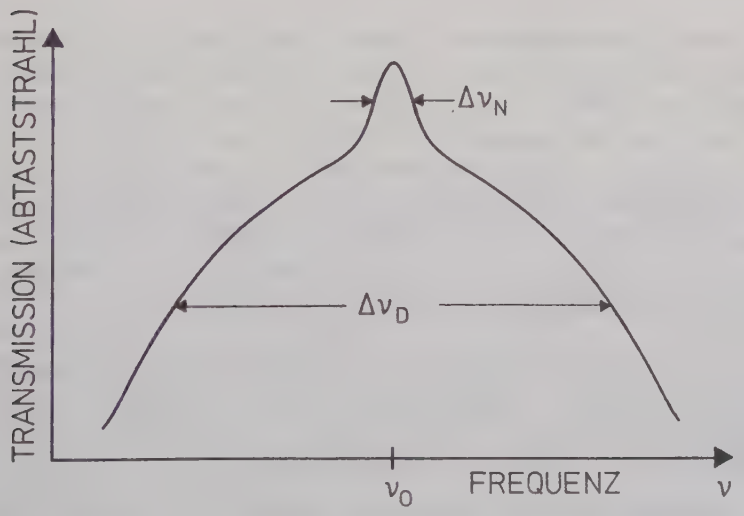

Abb. 2 Zur Erläuterung der Entstehung des Doppler-freien Absorptionssignals

Unterbricht man den Sättigungsstrahl periodisch mit einem Chopper und detektiert die Intensität des Abtaststrahls nach der Wechselwirkung phasenempfindlich (Lock-In-Verstärker), so erhält man beim Durchstimmen des Lasers jetzt nur noch das Doppler-freie Signal.
Ein typischer sättigungsspektroskopischer Aufbau ist in Abb. 5 Kapitel 4.2.2.1 dargestellt. Der vom Farbstofflaser kommende Strahl mit der Intensität I_0 wird nach einer Fokussierung (1 m-Linse) und Ausblendung von Lichtreflexen durch einen Strahlteiler (10 mm dicke, unbedampfte Quarzplatte) in einen durchgehenden Sättigungsstrahl ($\approx 0.9 \times I_0$) und zwei Abtaststrahlen ($\approx$ je $0.05 \times I_0$) in der dargestellten Weise aufgespalten.

Die beiden Abtaststrahlen werden über einen gemeinsamen Spiegel durch die Zelle geschickt. Über zwei weitere Umlenkspiegel werden sie auf ein Differenz-Fotodiodenmodul geleitet. Der Sättigungsstrahl wird so zur Zelle gelenkt, daß er einen der beiden Probestrahlen in Zellenmitte unter einem möglichst kleinen Winkel ($\alpha \approx 5$ mrad) kreuzt. Ein Chopper unterbricht den Sättigungsstrahl periodisch und ermöglicht einen phasenempfindlichen Nachweis der "Doppler-freien" Information mit Hilfe der Lock-In-Technik.

Für nichtentartete 3- oder 4-Niveausysteme treten innerhalb der Doppler-Breiten zusätzliche Linien, sogenannte Cross-Over-Signale /26/ auf. Sie liegen frequenzmäßig genau zwischen den eigentlichen Absorptionslinien und können positives oder negatives Vorzeichen haben. Wir unterscheiden drei verschiedene Cross-Over-Typen /27-29/ je nachdem, ob die Übergänge

- ein gemeinsames oberes Energieniveau (Fall "a")
- ein gemeinsames unteres Energieniveau (Fall "b")
- keine gemeinsamen Energieniveaus (Fall "c")

haben. Diese Übergangstypen sind in Abb. 3 schematisch dargestellt.

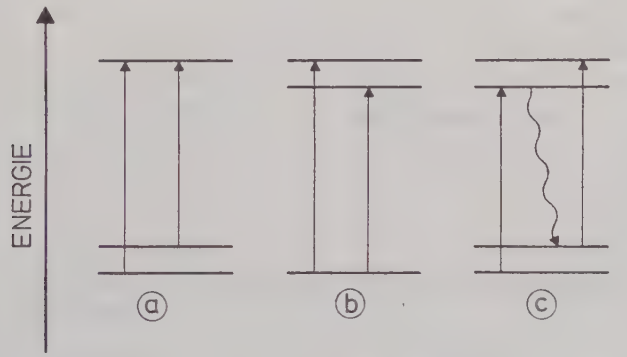

Abb. 3 Schematische Darstellung des Zusammenhangs zwischen Energieniveauverhältnissen und Cross-Over-Typen

Im folgenden soll phänomenologisch das Entstehen von Cross-Over-Signalen erklärt werden. Das einfache "Hole-Burning"-Modell genügt, um Entstehung und Frequenzlagen der Cross-Over qualitativ zu verstehen. Magnetfeld- und Polarisationseinflüsse können mit diesem Modell nicht diskutiert werden. Es liegen hierzu jedoch systematische experimentelle Untersuchungen vor /30,31/.

In einem 3-Niveausystem (Fall "a" und "b") tritt der in Sättigungs- und Abtaststrahl aufgeteilte Laserstrahl der Frequenz ν gleichzeitig mit vier Geschwindigkeitsklassen des Atomensembles in Wechselwirkung.

Abb. 4 zeigt, wo "Löcher" in das Doppler-verbreiterte Absorptionsprofil gebrannt werden und mit welchen Geschwindigkeitsklassen Sättigungs- und Abtaststrahl wechselwirken.

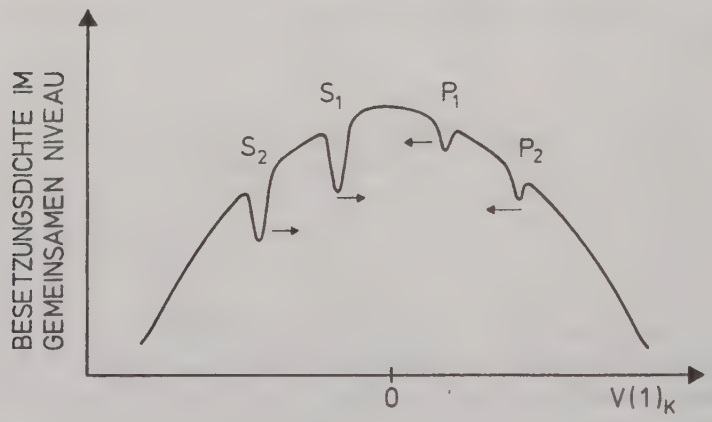

Abb. 4 Zur Erläuterung der Cross-Over-Signale. Dargestellt ist die relative Besetzungsdichte zweier Ausgangsniveaus als Funktion der Geschwindigkeit zweier Atomensembles 1 und 2, die mit dem Proben- und Sättigungsstrahl der Frequenz ν wechselwirken.

Signale sind immer dann zu erwarten, wenn sowohl Abtast- als auch Sättigungsstrahl mit der gleichen Geschwindigkeitsklasse wechselwirken. Beim Durchstimmen des Lasers wandern die "Löcher" S_1, S_2 und P_1, P_2 aufeinander zu, und die Wechselwirkung zwischen S_1 und P_1 findet mit der Geschwindigkeitsklasse ($v_z = 0$) statt. Im weiteren Verlauf "treffen" sich S_2 und P_1 sowie S_1 und P_2 in einer KLasse mit $v_z \neq 0$ ehe S_2 und P_2 wieder mit der Geschwindigkeitsklasse $v_z = 0$ wechselwirken. Frequenzmäßig finden diese Vorgänge nacheinander bei $\nu = \nu_1$, $\nu = \frac{1}{2}(\nu_1 + \nu_2)$ und $\nu = \nu_2$ statt.

Cross-Over können, da sie die Anzahl der Linien eines Spektrums erhöhen, zu einer Verminderung der Auflösung führen (siehe z. B. Sättigungsspektrum der Natrium-D_2-Linie). Bei den sättigungsspektroskopischen Experimenten im 462 nm- und 467 nm- Xenonübergang waren sie bei der Aufklärung der Hyperfeinstruktur jedoch von ausschlaggebender Bedeutung. In diesen Fällen konnte aus Intensitätsgründen nur eine von zwei möglichen HFS-Komponenten beobachtet werden. Da das zugehörige Cross-Over-Signal aber registriert werden konnte, war eine Auswertung des HFS-Spektrums dennoch möglich.

4.2.2 Maßnahmen zur Verbesserung des Signal/Rausch-Verhältnisses

Die Wechselwirkung des Sättigungsstrahls mit dem Atomensemble (v_z = 0) tritt als erhöhte Intensität des Probenstrahls ($\Delta I_p \approx$ 5 - 10 %) in Erscheinung und wird von Fotodioden in ein entsprechendes elektrisches Signal umgewandelt. Zur Unterdrückung des Doppler-Untergrunds wird die Intensität des Sättigungsstrahls moduliert (ω = 1.6 kHz). Die Doppler-freie Information steht dann als modulierter Anteil des Probenstrahls zur Verfügung und wird phasenempfindlich mit einem Lock-In-Verstärker nachgewiesen. Eine Intensitätsmodulation des Probenstrahls mit ω = 1.6 kHz, die durch andere Mechanismen verursacht wird, tritt in den Meßspektren als unerwünschtes Signal oder Rauschen auf. Signal/Rausch-Verhältnisse von ungefähr 50 sind in der Praxis problemlos zu erreichen, jedoch für die Untersuchung der radioaktiven Xe-Isotope völlig unzureichend. Bei der Untersuchung und Minimierung der einzelnen Rauschquellen

können das Fotodetektormodul, der Lock-In-Verstärker und der A/D-Konverter außer Betracht bleiben, da deren Rauschpegel jeweils um mindestens eine Größenordnung niedriger sind als die folgenden diskutierten Rauschquellen. Unter besten Bedingungen kann ein S/N-Verhältnis von 1000 erreicht werden.

4.2.2.1 Rauschquelle "Laser"

Das Intensitätsrauschen des Farbstofflasers kann je nach Gebrauchsdauer des Farbstoffes bis zu 30 % betragen. Im Gegensatz dazu sind typische Werte für einen unverbrauchten Farbstoff ca. 5 %. Mit zunehmender Gebrauchsdauer verschlechtert sich die Frequenzstabilität und verbunden damit auch die Durchstimmbarkeit. Aus diesen Gründen sollte z. B. der Farbstoff STILBEN 3 nach ca. 100 h pro Watt Pumpleistung erneuert werden. Vorteilhaft wirkt sich auch ein Wechsel sämtlicher Filter des Farbstoffumwälzsystems aus.
Eine Möglichkeit, Intensitätsschwankungen von Farbstofflasern in einem breiten Frequenzbereich (DC - 100 kHz) auszuregeln, besteht in der Verwendung schneller elektrooptischer Modulatoren. Aufgrund der geringen zur Verfügung stehenden Laserlichtleistung wurde auf die Verwendung dieses Verfahrens verzichtet. Bei dieser Methode verliert man ungefähr 30 % der Lichtleistung, was in unserem Fall nicht toleriert werden konnte. Stehen jedoch hohe Lichtleistungen zur Verfügung, so sollte man von dieser universellen Methode der Intensitätsstabilisierung Gebrauch machen.

Eine alternative Methode der Signal/Rausch-Verbesserung besteht in einer Differenzmessung zwischen Probenstrahl und einem zusätzlichen Referenzstrahl, der nicht vom Sättigungsstrahl beeinflußt wird (entsprechend Abb. 5).

Sowohl der Proben- als auch der Referenzstrahl stammen aus derselben Lichtquelle und sollten daher auch dieselben Intensitätsschwankungen haben. Durch eine elektronisch realisierte Differenzbildung zwischen den beiden Strahlen lassen sich in erster Näherung diese Schwankungen eliminieren. Dies führt zu einer Verbesserung des Signal/Rausch-Verhältnisses um ca. eine Größenordnung.

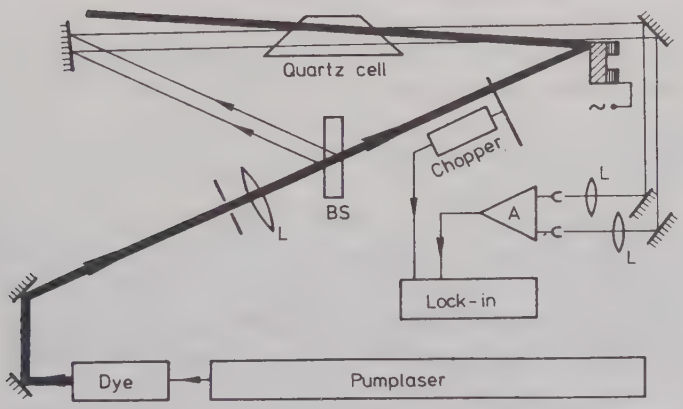

Abb. 5 Typischer sättigungsspektroskopischer Aufbau. Zur Unterdrückung des Intensitätsrauschens des Abtaststrahls wird dieser mit einem Referenzstrahl verglichen, der die Doppler-freie Information nicht enthält.

Folgende Punkte sind beim Arbeiten mit dieser Methode zu beachten:

- Die Lichtintensität im Probe- und Referenzzweig der Schaltung muß abgleichbar sein, damit am Ausgang der Differenzschaltung Null Volt anliegen, wenn beide Zweige die gleiche Intensität haben.
- Dieser Nullabgleich verschiebt sich, wenn der Laser über eine Resonanzlinie gestimmt wird, da sich dabei die Absorption des Probenstrahls ändert. Streng genommen ist der Abgleich also nur bei einer bestimmten Probenstrahlintensität optimal.
- Voraussetzung für das Funktionieren der Differenzmessung ist, daß beide Zweige wirklich das gleiche Intensitätsrauschen aufweisen. Durch einen möglichst identischen optischen Aufbau für beide Strahlen läßt sich dieses Ziel zufriedenstellend erreichen.

Mit einem Spektrumanalysator wurde eine Frequenzanalyse der Fotodetektorenspannung vorgenommen in der Hoffnung, Frequenzbereiche mit minimalem Intensitätsrauschen zu finden. Würde man die Chopperfrequenz in diese Bereiche legen, so ließe sich das Signal/Rausch-Verhältnis weiter verbessern.

Im vorliegenden Fall ergab die Untersuchung jedoch, daß der spektrale Verlauf der Laserlichtschwankungen bis ca. 10 kHz konstant ist, und daher im Frequenzbereich des zur Verfügung stehenden Choppers keine Verbesserung zu erwarten ist.

4.2.2.2 Rauschquelle "Streulicht"

Mit der Chopperfrequenz moduliertes Streulicht verursacht ebenfalls eine Signalwirkung am Ausgang des Lock-In-Verstärkers, wenn dieses auf die Fotodioden des Nachweissystems gelangt. In den meisten Fällen handelt es sich um Licht des Sättigungsstrahls, das an verschmutzten Zellenfenstern oder an Spiegelkanten in Richtung des Nachweisdetektors gestreut wird. Merkmale dieser Störung sind sehr große Signale auf dem Lock-In-Verstärker, die unabhängig von der Frequenz des Lasers sind.

Die folgenden Maßnahmen haben sich als sehr wirkungsvoll gegen Streulicht erwiesen:

- Rückstreuungsfreie "Vernichtung" des Sättigungsstrahls nach dem Durchgang durch die Zelle durch Mehrfachreflexionen an mattschwarzen Oberflächen;
- Peinliche Sauberkeit auf allen optischen Komponenten, die mit dem Sättigungsstrahl in Berührung kommen.
- Sorgfältige Strahlführung, d. h. Vermeidung von Spiegelkanten und Verwendung von reflektionsarmen, mattschwarzen Bauteilen an kritischen Stellen sowie Abdeckung oder Ausblendung von Lichtreflexen;

Ein Teil des Sättigungslichts gelangt direkt auf die Fotodioden und kann mit den oben beschriebenen Maßnahmen nicht unterdrückt werden. Durch eine Modulation des Umlenkspiegels, der den Sättigungsstrahl zur Zelle lenkt (siehe Abb. 5), kann man eine Verminderung des Rauschens am Lock-In-Verstärker um einen Faktor 3 bis 5 erreichen. Durch die Modulation (piezokeramischer Spiegelantrieb, ω = 1 kHz) wird wahrscheinlich die für diese Störung verantwortliche Phasenbeziehung des Streulichts zerstört.

4.2.2.3 Rauschquelle "Strahlführung"

Typische Resonanzfrequenzen von Laserresonatoren und Halterungen optischer Komponenten liegen im Bereich von ca. 200 Hz bis 5 kHz. Alle Bauteile des sättigungsspektroskopischen Aufbaus sind daher auf einer schwingungsgedämpften Marmorplatte montiert. Die durch akustische Anregung erzeugte Resterschütterung des Aufbaus wird durch Verwendung massiver mechanischer Halter sowie geeigneter Dämpfungsmaterialien unterdrückt.

4.2.2.4 Rauschquelle "Gasentladung"

Bei Xe-Druckwerten oberhalb 100 µbar treten in der verwendeten Resonanzzelle Plasmaschwingungen auf. Sie sind mit bloßem Auge als zeitlich veränderliche Strukturen in der Gasentladung zu erkennen und führen zu einer starken Modulation des Absorptionssignals.
Mit abnehmendem Druck verringert sich der Einfluß dieser Plasmaschwingungen auf das Absorptionssignal, insbesondere unterhalb einer Druckschwelle von 100 µbar. Bei den kleinsten erreichbaren Druckwerten (5 µbar) ist dieser Einfluß am geringsten. Durch geeignete Wahl des Vorwiderstandes für die Gleichstromentladung oder der Entladungsfrequenz (HF-Entladung) kann der störende Einfluß der Plasmaschwingungen vermindert werden.

4.2.3 Nachweisempfindlichkeit bei der Sättigungsspektroskopie an Xenonisotopen

Obwohl es sich bei einer solchen Betrachtung nur um eine Abschätzung handeln kann, ist sie aus zwei Gründen dennoch sehr interessant.

Insbesondere bei Experimenten mit sehr seltenen oder radioaktiven Isotopen muß man die Nachweisempfindlichkeit des Meßverfahrens und der Apparatur kennen um entscheiden zu können, ob das geplante Experiment überhaupt gelingen kann.

Außerdem ist es zu Vergleichszwecken natürlich interessant, die erreichte Empfindlichkeit mit der anderer Doppler-freier spektroskopischer Methoden (Polarisationsspektroskopie, intermodulierte Fluoreszenz, Atomstrahlverfahren) zu vergleichen.

Der größte Unsicherheitsfaktor bei der quantitativen Festlegung liegt in der Bestimmung der Besetzungsdichte des metastabilen Ausgangsniveaus begründet. In der Literatur findet man für das Verhältnis $N(1s_5)/N(1S_0) \approx 10^{-5}$ /32/. Dieser Wert ist zumindest von der Größenordnung her vergleichbar mit den entsprechenden Werten für Krypton /33/ und Argon /34/. Leider existieren in allen drei Fällen keine Besetzungsdichtewerte für Gasdrucke unterhalb 200 µbar, so daß über die Besetzungsverhältnisse bei dem hier verwendeten Druck von 10 µbar keine verläßliche Aussage gemacht werden kann. Im vorliegenden Fall kam nur eine lineare Extrapolation in Frage. Bei Untersuchungen im Bereich zwischen 200 µbar und 5000 µbar hat man jedoch ein Maximum der Besetzungsdichte bei ca. 300 µbar festgestellt /35/. In der folgenden Rechnung wird daher davon ausgegangen, daß das Verhältnis der Besetzungsdichten bei kleineren und größeren Drucken als 300 µbar nicht größer wird.

Die einzelnen Schritte der Empfindlichkeitsabschätzung sind im folgenden zusammengestellt. Sie beziehen sich auf das Isotop ^{124}Xe und die Signal/Rausch-Verhältnisse entsprechend Abb. 11, Kapitel 6.

1. Xenon-Teilchendichte bei 10 µbar: $3*10^{14}$ cm^{-3}

2. Teilchendichte im metastabilen $6s|3/2|_2$ - Niveau: $3*10^{9}$ cm^{-3}

3. Teilchendichte des ^{124}Xe-Isotops (0.09 % natürliche Häufigkeit) $3*10^{6}$ cm^{-3}

4. Signal/Rausch-Verhältnis des ^{124}Xe-Signals in Abb. 2, Kapitel 6 ist ≈ 10. Eine Reduktion des Signal/Rausch-Verhältnisses auf 1 führt zu folgender hypothetischer Teilchendichte: $3*10^{5}$ cm^{-3}

5. Anzahl der ^{124}Xe-Isotope im Wechselwirkungsvolumen (0.1 cm^3): $3*10^{4}$

6. Anzahl der ^{124}Xe-Isotope, die zum Doppler-freien Signal beitragen (die unter 5. angegebene Zahl wird mit $\Delta\nu_{NAT}/\Delta\nu_{D} \approx 0.02$ multipliziert): 600 .

Als Ergebnis ist festzuhalten:

Mit dem hier weiterentwickelten sättigungsspektroskopischen Aufbau kann es gelingen, unter Ausschöpfung aller derzeit zur Verfügung stehenden Möglichkeiten weniger als 1000 Atome nachzuweisen.

4.3 ZELLENPRÄPARATION

Hochauflösende laserspektroskopische Untersuchungen optischer Übergänge erfordern besondere Präparationstechniken. Die zu untersuchenden Atome oder Moleküle müssen als Gase unter einem Druck von weniger als 10 µbar zur Verfügung stehen, da sonst durch Druckverbreiterungseffekte (siehe Kapitel 5) Linien des Spektrums überlappen, und die angestrebte Frequenzauflösung verlorengeht.

Aus Gründen der Nachweisempfindlichkeit ist es vorteilhaft, Übergänge zu untersuchen, die vom Grundzustand ausgehen. Dies ist bei Edelgasen nicht möglich, da deren Resonanzlinien unterhalb 200 nm liegen und sich damit außerhalb der Reichweite heutiger cw-Laserlichtquellen befinden ($400\ \text{nm} < \lambda < 900\ \text{nm}$). Sieht man einmal von frequenzverdoppelten Lasern und Mehrphotonenexperimenten ab, so bleibt als Ausweg die künstliche Besetzung metastabiler oder zumindest langlebiger Niveaus. Diese Besetzung kann über eine Gleichstrom- oder Hochfrequenzentladung geschehen. Im Vergleich zu anderen Methoden erfordert sie den geringsten Aufwand. Nachteilig ist jedoch die geringe erzielbare Besetzungsdichte, insbesondere bei Edelgasen.
Da auch radioaktive Edelgase untersucht werden sollen, sind zusätzlich Sicherheitsaspekte bei der Handhabung der radioaktiven Edelgasisotope zu berücksichtigen. Aus diesem Grunde kam von Anfang an nur eine geschlossene Apparatur in Betracht. Einzelheiten dieses Systems werden im folgenden beschrieben.

4.3.1 Gasentladungszellen

In ihrer einfachsten Version (HF-Entladung) bestehen die Gasentladungszellen aus einem Quarzrohr, an dessen Enden unter dem Brewster-Winkel ellipsenförmige Fenster aufgeschmolzen sind. Aufgrund des sehr kleinen Ausdehnungskoeffizienten von Quarz ($\alpha = 5.5\ 10^{-7}$) sind solche Zellen unempfindlich gegenüber plötzlichen Temperaturänderungen, formstabil bis ca. 950°C und für Hochvakuum ($p < 10^{-6}$ mbar) geeignet, da die Zelle bei diesen hohen Temperaturen ausgeheizt werden kann. Abb. 6 zeigt einen solchen Zellentyp.

Abb. 6 Gasentladungszelle aus Quarz mit Brewsterfenstern und Kühlfinger

Es wurden auch Zellen gebaut, die für Gleichspannungsentladungen geeignet sind. Als Anode wird ein Stift aus Nickel verwendet. Die vakuumdichte Quarz-Metall-Verbindung wird über ein dünnes ($\approx$ 2 mm) Platinband erreicht, das die stark unterschiedlichen Ausdehnungskoeffizienten ausgleicht. Wegen der größeren thermischen Belastung besteht die Kathode aus einem Rohr aus Reinst-Aluminium ($\varnothing$ = 20 mm, L = 100 mm). Der elektrische Kontakt nach außen erfolgt wie bei der Anode. Dieser Zellentyp kann wegen der Aluminium-Kathode nur bis ca. 550°C ausgeheizt werden. Nach erfolgter Reinigung (4 h

ausheizen bei 400 bis 500°C, erhitzen mit der Flamme bis zur Rotglut, anregen der Zellenwände mit einer "HF-Spritze" nach dem Tesla-Prinzip) werden die Zellen gefüllt und durch Metallventile abgeschlossen (siehe Abb. 7).

4.3.2 Gasentladungstypen

Es wurden vier Entladungstypen auf ihre Eignung hin untersucht:

A) HF-Entladung (ω = 20 bis 100 MHz, P = 10 W), induktive Einkopplung des RF-Feldes über ca. 10 Windungen um den Zellkörper;

B) Mikrowellenentladung (ω = 2450 MHz, P = 20 W), Einkopplung über abstimmbaren Mikrowellenresonator;

C) Gleichspannungsentladung (Glimmentladung, $I=$ 5 mA, begrenzt durch 100 kΩ Widerstand, Spannung zwischen Anode und Kathode ca. 500 V), Anregungszone: positive Säule der Glimmentladung;

D) wie C), jedoch Anregungszone jetzt Kathodenraum;

Die Gasentladung sollte idealerweise folgende Kriterien erfüllen:

- Höchstmögliche Besetzungsdichte im metastabilen $1s_5$-Niveau (Paschen- Notierung) erzeugen;
- Starten der Gasentladung sollte ohne besondere Zündvorrichtung und bei allen Gasdrucken möglich sein.
- Gasentladung sollte insbesondere bei kleinen Drucken ($p<20$ µbar) stabil und ohne Inhomogenitäten brennen.

- Die Gasentladung sollte frei von Plasmaschwingungen sein und keine elektromagnetischen Störfelder aussenden.

Abb. 7 zeigt die Zelle, mit der unter identischen Bedingungen, d. h. gleichem Gasdruck und gleichem optischen Aufbau, der Einfluß der verschiedenen Gasentladungstypen auf die Qualität der Sättigungsspektren untersucht wurde.

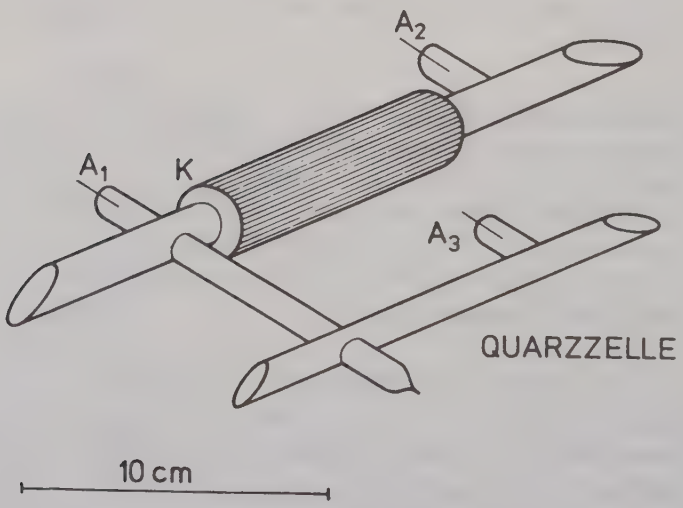

Abb. 7 Gasentladungszelle aus Quarz mit Elektroden. Dieser Zellentyp ermöglicht sowohl Gleichspannungs- als auch HF-Gasentladungen.

Zum Vergleich der Mikrowellen-, HF- und Gleichspannungsentladung war der vordere Teil der Zelle vorgesehen. Zum Vergleich mit den Verhältnissen im Kathodenraum konnte die ganze Zelle parallel verschoben werden. Das Ergebnis der Untersuchung ist in der folgenden Tabelle 1 zusammengefaßt.

Entladungstyp	Bevölkerung des $1s_5$-Niveaus	Zündung	kleinster Xe-Gasdruck	elektromagn. Störfelder
RF - Entladung	ausreichend	nur mit RF-Spritze	30 µbar	ja
Mikrowellen-Entladung	ausreichend	nur mit RF-Spritze	5 µbar	nein
Gleichspannungs-Entladung	ausreichend	ohne Hilfsmittel	25 µbar	nein
Hohlkathoden-Entladung	schlecht	ohne Hilfsmittel	25 µbar	nein

Tab. 1: Vergleich wichtiger Gasentladungseigenschaften der untersuchten Entladungstypen

In der Summe aller Eigenschaften ist die Mikrowellenentladung allen anderen Typen überlegen. Alle Messungen wurden daher mit Hilfe dieser Anregungsmethode durchgeführt.

4.3.3 Vakuumpumpstand

Zum Evakuieren und Füllen der Zellen wurde ein fahrbarer UHV-Pumpstand aufgebaut. Im Hinblick auf die Herstellung von Resonanzzellen für radioaktive Edelgase fiel die Wahl auf eine Turbomolekularpumpe (200 l/s). Mit solchen Pumpen läßt sich ein Enddruck von 10^{-10} mbar erreichen. Ein weiterer Vorteil gegenüber Diffusionspumpen ist das ölfreie Vakuum und das hohe Saugvermögen für Edelgase. Alle Leitungen und Verbindungsteile des Pumpstandes wurden mit UHV-Bauteilen großzügig dimensioniert, um einen möglichst niedrigen Enddruck im Bereich der Zelle zu erreichen. Zum Befüllen der Zellen mit stabilen Xenon-Isotopen-Gemischen wurde ein Gaseinlaß- und Dosiersystem konstruiert. Durch verschiedene Druckmeßtypen (Baraton, Ionisationsvakuummeter) konnte der gesamte Druckbereich von 1 bar bis 10^{-13} bar abgedeckt werden.

4.3.4 Präparation radioaktiver Xe-Isotope

^{127}Xe und ^{133}Xe sind kommerziell erhältliche radioaktive Edelgase, die normalerweise in der medizinischen Diagnostik verwendet werden /36/.

^{127}Xe ist ein Zyklotronprodukt, das nach folgender Reaktionsgleichung hergestellt wird: $^{133}Cs(p,2p5n)^{127}Xe$.
Ein CsCl-Präparat wird mit 100 bis 200 MeV-Protonen bestrahlt. Nach der Bestrahlung wird das CsCl-Präparat geschmolzen. Das dabei entweichende ^{127}Xe wird mit Helium weggespült und in einer Kühlfalle mit flüssigem Stickstoff ausgefroren. Anschließend wird das Xenongas in Ampullen aus Pyrex-Glas destilliert. Die Reaktion nach obiger Gleichung ist leider nicht selektiv, so daß gleichzeitig auch andere stabile und radioaktive Xenonisotope in der Zelle vorhanden sind.

^{133}Xe entsteht in Kernreaktoren als Folge der Spaltung von ^{235}U mit thermischen Neutronen.

Die folgende Tabelle 2 zeigt die Häufigkeit der verschiedenen Xenon-Isotope in den verwendeten radioaktiven $^{127,133}Xe$-Proben. Zum Vergleich sind die Isotopenhäufigkeiten des natürlich vorkommenden Xenon mitaufgeführt.

Xenon-Isotop	natürliche Häufigkeit	^{127}Xe-Probe(%) Oak Ridge	^{133}Xe-Probe(%) Oak Ridge	theo. Xe-Häufigkeit bei Uran-Kernsp. (%)	^{133}Xe-Probe(%) Amersham
124	0.09	3			0.1
126	0.09	5			0.1
127		1			
128	1.92	6			2.0
129	26.44	28			26.0
130	4.08	7			4.0
131	21.18	22	11	10	22.0
132	26.89	15	16	16	16.0
133			0.5	23	0.2
134	10.44	7	28	28	14.0
136	8.87	6	47	23	17.0

Tab. 2 Isotopenhäufigkeiten der verwendeten stabilen und radioaktiven Xenongase

4.3.4.1 Allgemeines

Die radioaktiven Xenonproben werden in Aufschlagampullen aus Pyrex-Glas geliefert. Für die eigentlichen spektroskopischen Untersuchungen mußten die folgenden Maßnahmen getroffen werden:

- Überführen der Gasprobe in die Meßzelle
- Beseitigung von Beimischungen (N_2, O_2, CO_2)
- Einstellung eines Gasdrucks von 10 µbar in der Meßzelle
- Ummantelung der Meßzelle samt Transfereinrichtung mit einer Bleiabschirmung .

Abb. 8 zeigt den entwickelten Transfermechanismus ohne das Abschirmgehäuse. Alle Teile der Apparatur bestehen auch hier aus UHV-Bauteilen. Zusätzlich wurde die Meßzelle vor dem endgültigen Zusammenbau der Apparatur 30 Minuten im Ultraschallbad gereinigt (DACONEX Reinigungsmittel). Beim Ausheizen der Apparatur (400°C) wurde die Zelle ebenfalls 30 Minuten mit offener Flamme bis zur Rotglut (900°C) unter gleichzeitigem Evakuieren erhitzt. Das Ergebnis dieser Maßnahmen war ein Enddruck von $2 * 10^{-9}$ mbar und eine nicht mehr meßbare Leckrate der Transfereinrichtung.

4.3.4.2 Transfer in die Meßzelle

Die Pyrexampulle wird mit Hilfe einer Manipuliereinrichtung (Glasstab mit speziellem Gummisauger) von oben durch eine Öffnung rasch in den Aufschlagteil des Transfermechanismus eingesetzt. Daraufhin wird die Öffnung wieder vakuumdicht verschlossen. Wie bereits vorher beschrieben, wird unterdessen der gesamte

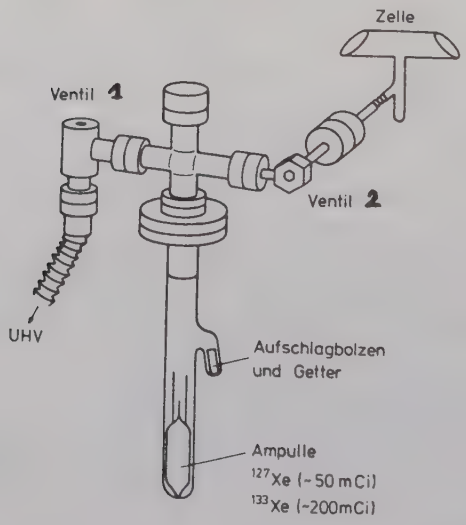

Abb. 8 Öffnungs- und Transfermechanismus für radioaktive Xe-Gase

Transfermechanismus evakuiert und gleichzeitig beheizt. Dieser Vorgang dauert ca. 12 Stunden. Anschließend wird Ventil Nr. 1 geschlossen und der Transfermechanismus vom Pumpstand gelöst. Das Endstück der Verbindung zum Pumpstand wird aus Sicherheitsgründen ebenfalls verschlossen.

Ein von außen mit einem Magnet bewegbarer Aufschlagbolzen befindet sich bereits in einem Seitenarm des Aufschlagbereichs. Hier befindet sich auch ein Al-Zr-Getter, dessen Aufgabe es ist, gasförmige Verunreinigungen (insbesondere N_2, O_2, CO_2, H_2) zu absorbieren.
Dazu muß nach dem Öffnen der Ampulle das Gettermaterial von außen auf ca. 800 bis 900 °C für ca. 5 Minuten erhitzt werden.Das Gettermaterial wird erst bei diesen hohen Temperaturen aktiviert und bindet chemisch die oben genannten Gase, die als wirksame "Quencher" für metastabile Zustände bekannt sind. Xenon als Edelgas geht keine Bindung ein.
Nach dem Aufschlagen der Ampulle hat sich das Gas im gesamten Transfermechanismus verteilt (Ventil 2 ist ebenfalls geöffnet). Der Gasdruck reicht jedoch nicht zum Zünden einer Gasentladung aus. Aus diesem Grund wird der Kühlfinger der Meßzelle mit flüssigem Stickstoff gekühlt. Nach ca. 15 Minuten befinden sich mehr als 90 % des Xenongases im Kühlfinger. Schließt man Ventil Nr. 2 und unterbricht anschließend die Kühlung, so steigt der Xenondruck sehr schnell (30 s) auf ca. 1 mbar an. Dieser Druckwert läßt sich sowohl aufgrund der Druckverbreiterung der Spektren als auch aus der Entladungsfarbe bestimmen. Bei diesem Druck bereitet die Zündung einer Mikrowellenentladung keine Schwierigkeiten mehr.

4.3.4.3 Einstellung des Betriebsdrucks

Sobald die Entladung brennt, beginnt man erneut mit flüssigem Stickstoff oder mit flüssiger Luft zu kühlen, um

den Druck einzustellen, der für hochauflösende Messungen geeignet ist. In Anbetracht der Mikrowellenleistung von ca. 20 W und der geometrischen Abmessungen der Meßzelle und des Kühlfingers stellt sich durch die Kühlung mit flüssigem Stickstoff in der Zelle ein Xenondruck von ca. 10 µbar ein. Dieser Wert wurde in einem Vorversuch mit stabilen Xenonisotopen gemessen.

Durch diese Art der Druckeinstellung kann man den Druck so klein wählen, daß die Entladung gerade noch sicher brennt. Dieser niedrige Druck eliminiert praktisch alle Druckverbreiterungs- und Druckverschiebungseffekte.
Auf der anderen Seite führt dieser für Gasentladungen extrem niedrige Druck zu einem als "Gasaufzehrung" bezeichnetem Effekt. Die freie Weglänge zwischen zwei Stößen ist bei diesem Druck bereits größer als die Abmessungen der Zelle. Ionisierte Xenonatome werden unter Einfluß der elektrischen Felder in die Zellenwände hineingeschossen und verbleiben bei Zimmertemperatur in der Wand. Wenn das Xenon ausschließlich als Gas in der Zelle wäre, würde die Entladung nach ca. 30 Minuten aufgrund des Druckverlustes durch "Gasaufzehrung" von selbst erlöschen. Da jedoch aus dem ausgefrorenen Xenonvorrat stets Gas nachgeliefert wird, bleibt der Xenondruck trotz "Gasaufzehrung" so lange konstant, bis alles Xenon aus dem Kühlfinger "verbraucht" ist. Bei den hier verwendeten Gasproben war dies erst nach ca. 30 Stunden der Fall.

Den größten Teil ($\approx$ 80 %) des so in den Wänden der Zelle eingelagerten Xenons kann man jedoch durch Erhitzen der Zellwände auf ca. 800 °C wieder freisetzen. Dies ist ohne Gefahr für die Sauberkeit der Zelle möglich, da sie während der Evakuierung mit noch höheren Temperaturen ausgeheizt wurde.
Nach einer solchen Behandlung steht wieder genügend freies Xenon zur Verfügung, und die Zelle ist für weitere Messungen einsatzfähig.

Die Entwicklung dieses Transfer- und Druckeinstellverfahrens war entscheidend für den Erfolg bei der Spektroskopie der radioaktiven Xenonisotope.

4.3.4.4 Abschirmung der radioaktiven Strahlung

Zum Schutz vor der Strahlung der radioaktiven Isotope wurde der gesamte Transfermechanismus mit einem 15 mm starken Bleigehäuse umgeben. Dennoch konnten alle notwendigen Arbeiten wie Zünden der Gasentladung, Nachfüllen von flüssigem Stickstoff und Öffnen oder Schließen des Ventils Nr. 2 von außen über Manipulatoren im Schutz der Abschirmung vorgenommen werden. Mit diesen Sicherheitsmaßnahmen war es möglich, ohne Gefahr Xe-Aktivitäten von über 250 mCi für die Experimente einzusetzen.

REFERENZEN

/1/ H. Gerhardt, E. Matthias, F. Schneider, A. Timmermann: Z.Phys. **A 288**, 327 (1978)

/2/ W. Makat: Diplomarbeit FU Berlin (1980)

/3/ F. Jeschonnek: Diplomarbeit FU Berlin (1980)

/4/ R. Wenz, A. Timmermann, E. Matthias: Z.Phys. **A 303**, 87 (1981)

/5/ Snavely: Topics in Appl. Phys, Vol. 1, 2nd Ed. Schäfer, Springer Verlag (1980)

/6/ H. W. Schröder, L. Stein, D. Fröhlich, F. Fugger, H. Welling: Appl. Phys. **14**, 377 (1978)

/7/ I. V. Hertel, A. Stamatović: IEEE J. **QE-11**, 210 (1975)

/8/ J. Evans: J.Opt.Soc.Am. **39**, 229 (1949)

/9/ A. Timmermann: Diplomarbeit FU Berlin (1977)

/10/ J. L. Hall, S. A. Lee: Appl.Phys. Lett. **29**, 367 (1976)

/11/ P. Juncar, J. Pinard: Opt. Com. **14**, 438 (1975)
/12/ G. Nowicki, K. Bekk, S. Göring, H. Hanser, H. Rebel, G. Schatz: Phys. Rev. Lett. **39**, 332 (1977)
/13/ J. L. Hall: IEEE J. **QE-4**, 638 (1968)
/14/ B. Burghardt, W. Jitschin, G. Meisel: Appl. Phys. **20**, 141 (1979)
/15/ H. Gerhardt, F. Jeschonnek, W. Makat, F. Schneider, A. Timmermann, R. Wenz, P. West: Appl. Phys. **22**, 361 (1980)
/16/ D. A. Jackson, M. C. Coulombe: Proc.R.Soc.Lond. **A338**, 277 (1974)
/17/ W. Fischer, H. Hühnermann, G. Krömer, H. J. Schäfer: Z.Phys. **270**, 113 (1974)
/18/ R. Abjean, M. Leriche: Opt.Com. **15**, 121 (1975)
/19/ S. L. Kaufman: Opt. Com. **17**, 309 (1976)
/20/ B. Cagnac, G. Grynberg, F. Biraben: J. Phys. **34**, 845 (1973)
/21/ T. W. Hänsch, I. S. Shahin, A. L. Schawlow: Phys. Rev. Lett. **27**, 707 (1971)
/22/ C. Wieman, T. W. Hänsch: Phys. Rev. Lett. **36**, 1170 (1976)
/23/ M. S. Sorem, A. L. Schawlow: Opt. Com. **5**, 148 (1972)
/24/ F. V. Kowalski, W. T. Hill, A. L. Schawlow: Opt. Lett. **2**, 112 (1978)

5. STÖREINFLÜSSE AUF SÄTTIGUNGSSPEKTREN

5.1 DRUCKVERBREITERUNG DER SÄTTIGUNGSLINIEN

5.2 DRUCKVERSCHIEBUNG DER SÄTTIGUNGSLINIEN

5.3 LEISTUNGSVERBREITERUNG DER SÄTTIGUNGSSIGNALE

5.4 VERBREITERUNG UND AUFSPALTUNG DER SÄTTIGUNGS-
SIGNALE DURCH MAGNETFELDER

5.5 LINIENFORM DER SÄTTIGUNGSSIGNALE

5.6 EINZELBEITRÄGE ZUR BREITE DER SÄTTIGUNGSSIGNALE

5. STÖREINFLÜSSE AUF SÄTTIGUNGSSPEKTREN

Die Resonanzübergänge der hier untersuchten Elemente können wegen der erforderlichen kurzen Wellenlänge (200 nm) nicht mit den derzeit bekannten Laserlichtquellen untersucht werden. Ausgangspunkt für hochauflösende Doppler-freie Messungen kann daher nur ein möglichst langlebiger oder metastabiler, d.h. ausreichend bevölkerter Zustand sein.

Für die Besetzung metastabiler Zustände sind verschiedene Methoden bekannt. Verwendet man, wie in unserem Fall, für die Untersuchungen Resonanzzellen, so bietet sich die Elektronenstoß-induzierte-Besetzung der Niveaus durch eine Gasentladung an.

Diese in der experimentellen Durchführung relativ einfache Methode beinhaltet jedoch auch spezifische Nachteile, die sich auf die Spektren störend auswirken, wie:

- Gasdruck nicht beliebig wählbar
- Linienverbreiterung durch Stöße /1/
- Linienverbreiterung durch elektrische Felder (Holtzmark-Verbreiterung /2/)
- Sehr geringer Anregungswirkungsgrad ($N_e/N_g \approx 10^{-5}$) .

Diese und andere Störeinflüsse sollen in den folgenden Abschnitten untersucht und diskutiert werden.

5.1 DRUCKVERBREITERUNG DER SÄTTIGUNGSLINIEN

Die in Kapitel 4 beschriebenen Gasentladungstypen zünden und brennen zuverlässig im Druckbereich von 200 µbar bis 5000 µbar. In diesem Bereich wird auch das Optimum der durch solche Gasentladungen erzeugbaren Besetzungsdichten der metastabilen $^3P_2$-Edelgasniveaus erreicht.

Für einen extrem hochauflösenden sättigungsspektroskopischen Nachweis muß der Gasdruck des zu untersuchenden Elements jedoch kleiner als 30 µbar sein, da sonst durch Stöße die Sättigung des Geschwindigkeitsensembles $\vec{v} \perp \vec{k}_{Laser}$ gestört wird ($\vec{k}_{Laser}$ = Richtung des Sättigungsstrahls).

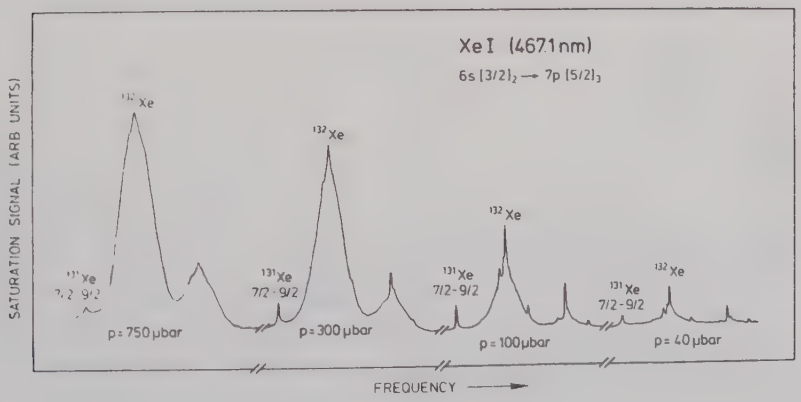

Abb. 1 Qualitative Untersuchung der Druckverbreiterung eines Sättigungsspektrums des 467 nm-Xe-Übergangs

Wie in Abb. 1 für verschiedene Druckwerte zu sehen ist, tritt bei Drucken über 40 µbar der Doppler-Untergrund wieder in Erscheinung. Bei noch höheren Drucken ($p > 100$ µbar) können dadurch Linien verdeckt und verschoben werden (vgl. z.B. die hochfrequenten Bereiche der Teilspektren in Abb. 1). Sowohl die Frequenzauflösung als auch das Verhältnis von Sättigungssignal zu Doppler-Untergrund werden mit zunehmendem Druck kleiner.
Bei stabilen Isotopengemischen und "offenen" Zellen kann man durch Abpumpen stets einen geeigneten Druckbereich einstellen. Bei radioaktiven Isotopengemischen muß jedoch aus Sicherheitsgründen mit abgeschlossenen Zellen gearbeitet werden. Nach der Zellenfüllung ist der Druck im allgemeinen nicht mehr veränderbar (siehe Kapitel 4).

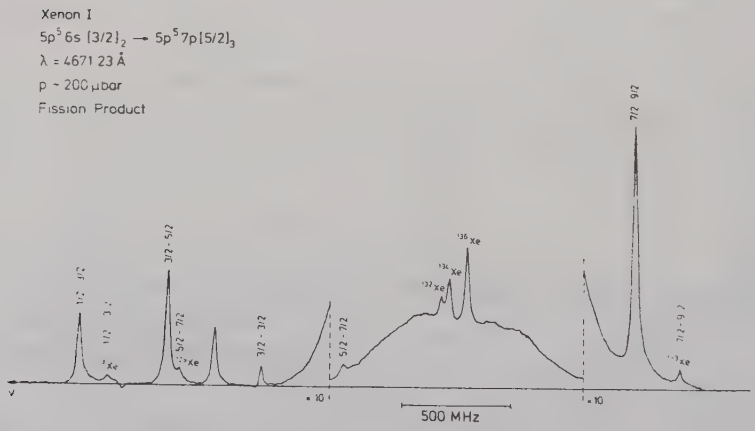

Abb. 2 Typisches, stark druckverbreitertes Sättigungssignal einer radioaktiven ^{133}Xe-Gasprobe, bei der keine nachträgliche Druckverminderung möglich war.

Abb. 2 zeigt das Sättigungsspektrum einer solchen radioaktiven Xenonprobe. Während an den Rändern des Spektrums die Verbreiterung der Hyperfeinlinien gerade noch toleriert werden kann, tritt in der Mitte bereits ein bei der Auswertung störender Doppler-Untergrund auf. Sowohl Abb. 1 als auch Abb. 2 zeigen qualitativ den Einfluß des Xenongasdrucks auf Sättigungsspektren im 467 nm-Xe-Übergang.

In einem separaten Experiment wurde der Einfluß des Drucks auf die Breite der 7/2-9/2 Hyperfeinlinie des stabilen Isotops ^{131}Xe quantitativ untersucht. Die gemessenen Linienbreiten der Sättigungssignale sind in Abb. 3 als Funktion des Xe-Drucks aufgetragen. Im Rahmen der Meßfehler erkennt man einen linearen Zusammenhang.

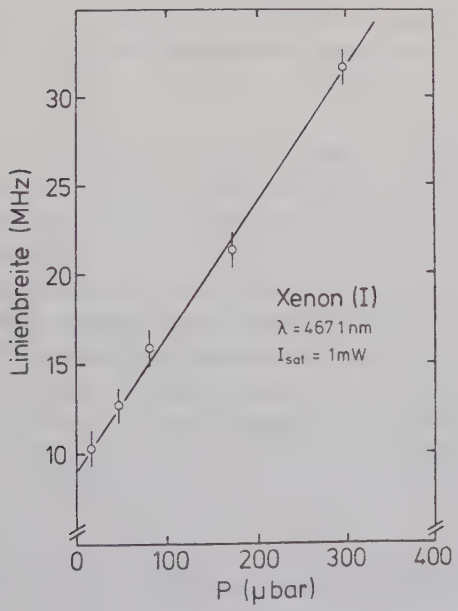

Abb. 3 Linienbreite des 7/2-9/2 Hyperfeinübergangs des ^{131}Xe als Funktion des Xe-Gasdrucks

Aus der Steigung und dem Achsenabschnitt der Ausgleichsgeraden in Abb. 3 erhält man die Druckverbreiterungskonstante γ für $Xe(^3P_2)$-$Xe(1S_0)$-Stöße und die auf p = 0 µbar extrapolierte Linienbreite des Sättigungssignals $\Delta\nu(p=0)$.

Als numerische Werte erhält man:

$$\gamma_{467} = 75(6) \text{ MHz/mbar und}$$

$$\Delta\nu_{467}(P=0) = 9(1) \text{ MHz} .$$

Aufgrund der Lebensdauer würde man eine natürliche Linienbreite von 1 MHz erwarten.

5.2 DRUCKVERSCHIEBUNG DER SÄTTIGUNGSLINIEN

Neben der Linienbreite ändert sich mit steigendem Druck auch die Linienlage (Frequenz) der Sättigungssignale /1/.

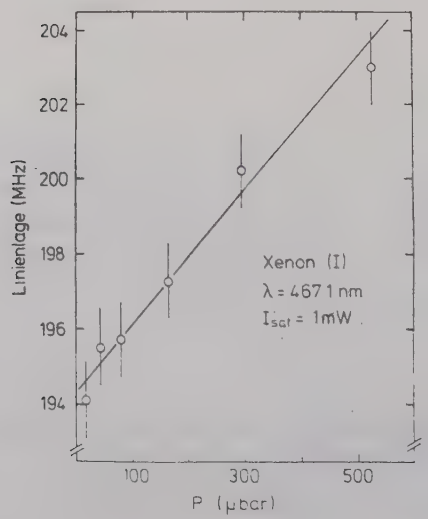

Abb. 4 Linienverschiebung des 7/2-9/2 Hyperfeinübergangs von ^{131}Xe als Funktion des Xe-Gasdrucks

Abb. 4 zeigt die Verschiebung der relativen Frequenzlage der 7/2-9/2 Hyperfeinkomponente des Isotops ^{131}Xe im 467 nm-Übergang als Funktion des Xe-Drucks. Die relative Linienlage entspricht dem Frequenzabstand des Offset-Lasers zum He-Ne-Wellenlängenstandard (stabilisiert auf die B-Komponente des $^{129}I_2$-Moleküls; siehe Kapitel 4).

Aus apparativen Gründen entspricht einer Zunahme der relativen Linienlage auf der He-Ne-Frequenzskala eine Abnahme der Frequenz auf der Xe-Frequenzskala (siehe Kapitel 4).
Aus der Steigung der Ausgleichsgeraden in Abb. 4 erhält man für die Verschiebung $\Delta\nu_{shift}$ der Sättigungssignale im 467 nm-Übergang:

$$\Delta\nu_{shift} = -18(2)\ \text{MHz/mbar}.$$

Das negative Vorzeichen gibt an, daß die Übergangsfrequenz mit steigendem Xe-Druck abnimmt.

Für die Genauigkeit der im Kapitel 6 vorgestellten Isotopieverschiebungsmessungen spielt dieser Effekt keine Rolle. Unsere Messungen wurden stets an allen Isotopen gleichzeitig, d.h. unter identischen Druckverhältnissen vorgenommen. Es sind daher keine druckabhängigen Verschiebungen zu berücksichtigen. Es gibt jedoch Methoden, bei denen mit zwei getrennten, hoch angereicherten Isotopenproben gearbeitet werden muß /4/. Unterschiedliche Fülldrucke der Gaszellen führen bei ISV-Messungen in solchen Fällen zu Fehlern. Um die Konsistenz verschiedener Messungen sicherzustellen, eignet sich ein King-Plot /5/.

Abb. 5 zeigt einen solchen King-Plot, der die in dieser Arbeit ermittelten Isotopieverschiebungsdaten für die 467 nm-

Linie mit denen von Vetter /6/ im 3996 nm-Übergang und mit den von Borghs /7/ im 605 nm-Übergang gefundenen Daten vergleicht.

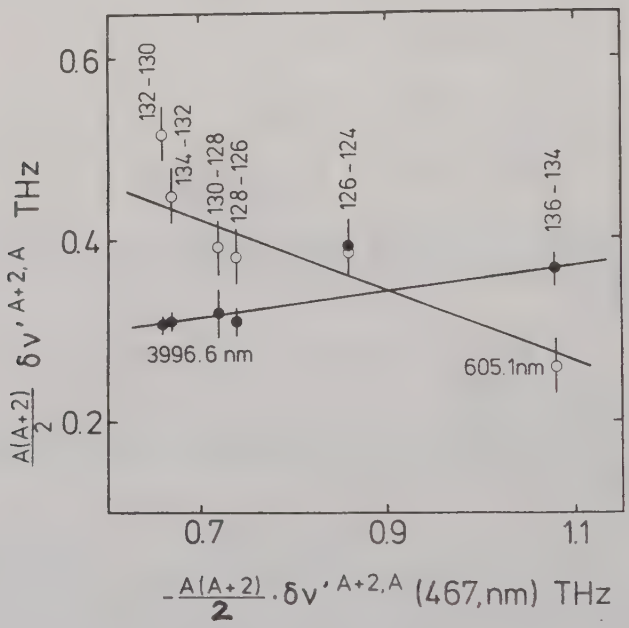

Abb. 5 King-Plot-Vergleich von Xe-ISV-Daten des 3996 nm- und des 605 nm-Übergangs mit dem in dieser Arbeit untersuchten 467 nm-Übergang

Bis auf die Isotopenpaare ^{126,124}Xe und ^{132,130}Xe ist im Rahmen der Meßfehler eine gute Übereinstimmung der Isotopieverschiebungen festzustellen. Die Abweichung des Paares ^{126,124}Xe von der King-Geraden ist möglicherweise durch einen fehlerhaften Fülldruck der ^{126}Xe- und/oder der ^{124}Xe-Zelle verursacht worden. Nach den Druckverschiebungs-

daten für die 3996 nm-Linie würde ein Druckfehler von zirka 150 µbar ausreichen, um diese Abweichung von der King-Geraden zu erklären.

Obwohl prinzipiell möglich, ist nicht beabsichtigt, aus den Messungen der Abschnitte 5.1 und 5.2 Informationen über Stoß-Wechselwirkungspotentiale zu gewinnen. Dazu wäre auch eine Zerlegung der Linienbreiten in Gauß- und Lorentz-Anteile notwendig gewesen /8/.

Ziel dieser Untersuchungen war es, quantitative Vorstellungen über die Druckverbreiterungs- und Druckverschiebungseinflüsse auf den 467 nm-Übergang zu erhalten.
Die einfache und genaue Durchführung dieser Messungen demonstriert jedoch die Eignung dieses Laserspektrometers für solche Untersuchungen.

5.3 LEISTUNGSVERBREITERUNG DER SÄTTIGUNGSSIGNALE

Die Linienbreite der Sättigungssignale ist abhängig von der eingestrahlten Laserlichtleistung. Durch induzierte Emmission und Absorption werden die effektiven Lebensdauern der beteiligten Niveaus verkürzt und damit die Linienbreiten der Doppler-freien Absorptionssignale verbreitert.
Für einen inhomogen verbreiterten Übergang gilt für die Breite einer Sättigungslinie in Abhängigkeit von der Laserlichtleistung I /9/:

$$\Delta\nu = \Gamma_{ik}\,(1 + I_s/I)^{1/2} \quad .$$

Abb. 6 zeigt zwei mit stark unterschiedlichen Laserlichtleistungen gewonnene Sättigungsspektren ein- und desselben Frequenzintervalls. Eine Laserlichtleistung von 8 mW führt zu klar erkennbaren Linienverbreiterungen. Im Laufe der Untersuchungen stellte sich heraus, daß eine Leistungsdichte von 1 mW/mm² ein sehr gutes Signal/Rausch-Verhältnis bei gleichzeitig fast minimaler Linienbreite liefert.

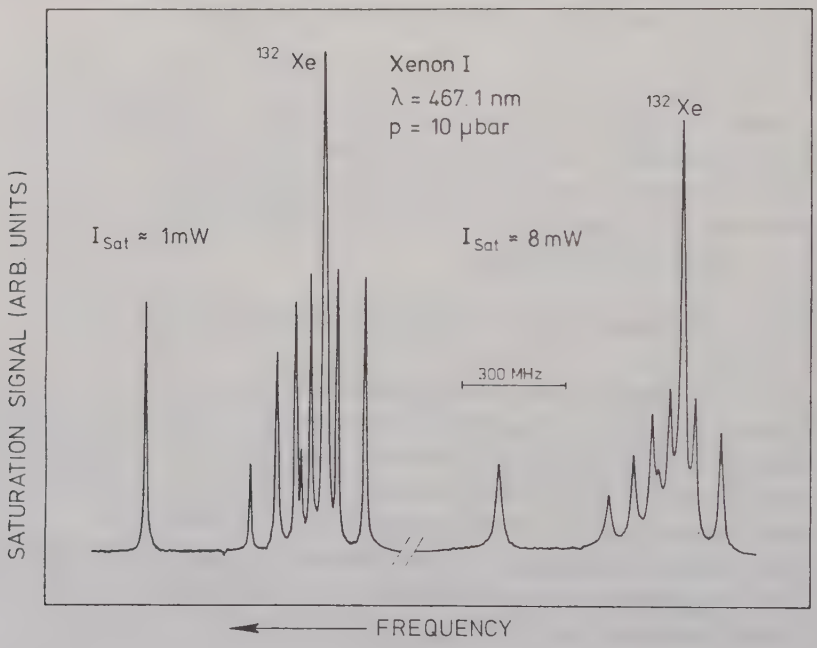

Abb. 6 Qualitative Darstellung des Einflusses der Leistung des Sättigungsstrahls auf die Breite von Sättigungssignalen. Eine Lichtleistung von 8 mW führt im 467 nm-Übergang bereits zu einer deutlich verschlechterten Frequenzauflösung.

Nicht in jedem Fall konnte mit der optimalen Leistung von 1 mW gemessen werden, wie z.B. bei den sehr intensitätsschwachen Hyperfeinlinien der radioaktiven Isotope. Dort mußte zum Teil trotz "Average-Technik" zur Erzielung eines befriedigenden Signal/Rausch-Verhältnisses mit hoher Leistungsdichte (8 mW/mm²) gearbeitet werden.

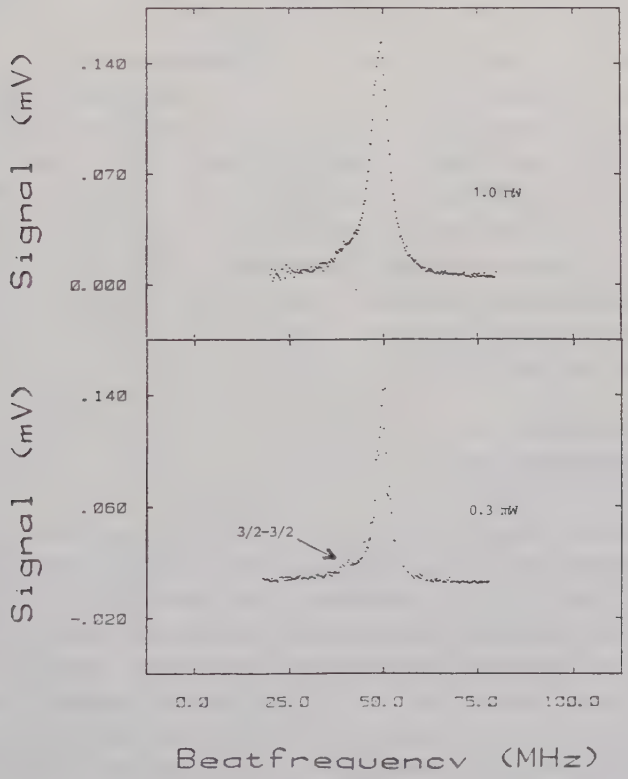

Abb. 7 Verbesserung der Frequenzauflösung im 462 nm-Übergang durch Verminderung der Leistung des Sättigungsstrahls von 1 mW (oberes Bild) auf 0.3 mW (unteres Bild). Erst jetzt läßt sich die kleine 3/2-3/2 Hyperfeinlinie des radioaktiven ^{127}Xe-Isotops an der Flanke der intensiveren 7/2-7/2 Hyperfeinlinie des stabilen ^{131}Xe-Isotops auflösen.

Bei dichtbenachbarten Linien muß jedoch neben dem Gasdruck die Laserlichtleistung zum Zwecke einer maximalen Frequenzauflösung so gering wie möglich gewählt werden. Die mit diesen kleinen Lichtleistungen verbundene Verschlechterung des Signal/Rausch-Verhältnisses wurde durch Mitteln mehrerer Meßspektren ("Average-Technik") wieder ausgeglichen.
Abb. 7 zeigt am Beispiel der 3/2-3/2 Hyperfeinlinie des radioaktiven Isotops ^{127}Xe, wie die Verwendung kleiner Lichtleistungen -kombiniert mit der "Average-Technik"- zum Erfolg geführt hat. Der Frequenzabstand der zudem sehr unterschiedlich großen Sättigungssignale beträgt ca. 30 MHz. Das obere Spektrum wurde mit einer auf 0.3 mW/mm^2 reduzierten Leistungsdichte gemessen und aus sechs Einzelspektren zusammengesetzt. Im unteren Spektrum macht sich die "radioaktive" Hyperfeinlinie nur als Asymmetrie der intensiveren Linien bemerkbar.

5.4 VERBREITERUNG UND AUFSPALTUNG VON SÄTTIGUNGSLINIEN DURCH MAGNETFELDER

Hochauflösende Untersuchungen an Atomen zeigen, wie empfindlich gerade solche Systeme auf äußere magnetische oder elektrische Felder reagieren /10/. Den Einfluß eines relativ schwachen Magnetfeldes ($B < 500$ G), welches bereits durch die in solchen Experimenten üblichen magnetischen Halter in einem Abstand von ca. 1 cm von der Resonanzzelle erzeugt werden kann, zeigt Abb. 8. Ein Magnetfeld dieser Größenordnung bewirkt sowohl bei den Hyperfeinlinien als auch bei den Sättigungssignalen für die geraden Xenonisotope eine ausgeprägte Zeeman-Aufspaltung.

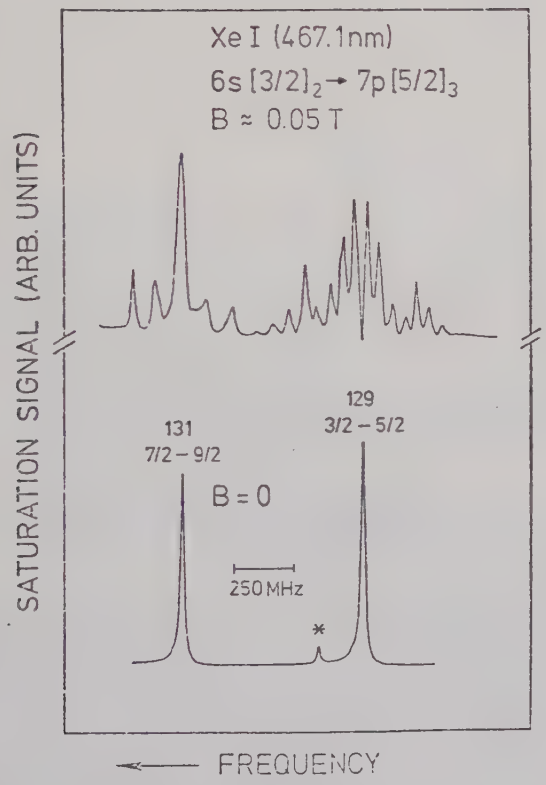

Abb. 8 Einfluß eines 5oo G Magnetfeldes auf das Sättigungsspektrum zweier Hyperfeinlinien. Im unteren Teil sind die Verhältnisse ohne Magnetfeld dargestellt.

Geringere Magnetfelder (B < 50 G) bewirken im Falle der hier untersuchten Xenon-Übergänge nur eine Verbreiterung oder eine andeutungsweise Aufspaltung der Linien, wie im oberen Teil von Abb. 9 zu sehen ist.

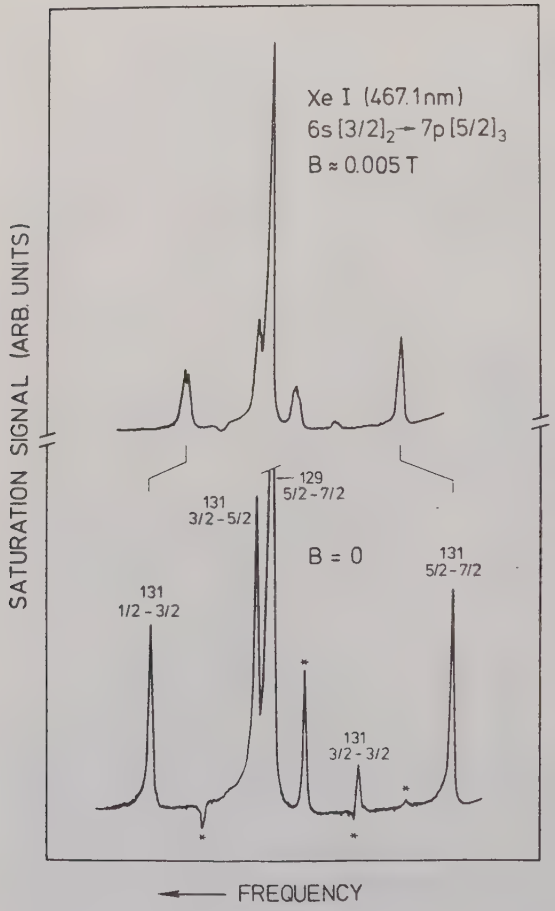

Abb. 9 Einfluß eines 50 G Magnetfeldes auf Hyperfeinlinien. Im unteren Teil ist das Spektrum ohne Magnetfeld dargestellt.

Sie sind von den in den vorausgegengenen beschriebenen Verbreiterungsmechanismen nicht immer sofort zu unterscheiden. Im allgemeinen muß daher der experimentelle Aufbau im Bereich der Resonanzzelle so geplant und ausgeführt werden, daß magnetische Störfelder (Magnethalter, Erdmagnetfeld, Lasermagnete) quantitativ abgeschirmt werden.

Die Abhängigkeit der Cross-Over-Signalamplitude und der Cross-Over-Richtung unter dem Einfluß von Magnetfeldern wurde ausführlich im Rahmen unserer Arbeitsgruppe am ^{23}Na untersucht /11/.
Ähnliche Beobachtungen wurden schon früher auch an Xenon-Cross-Over-Signalen gemacht. Es soll hier jedoch nicht weiter darauf eingegangen werden.

5.5 LINIENFORM DER SÄTTIGUNGSSIGNALE

Im allgemeinen Fall enthält die Linienform der Sättigungssignale sowohl Gauß- als auch Lorentz-Anteile. Diese auch als Voigt-Profil bekannte Linienform läßt sich wie folgt darstellen:

$$I(\omega_0-\omega, \Gamma/\Delta) = \int_0^\infty g(\omega_0'-\omega_0, \Delta)\, \mathcal{L}(\omega-\omega_0, \Gamma)\, d\omega_0'$$

mit $$g(\omega_0'-\omega_0, \Delta) = \frac{2}{\Delta \pi^{1/2}} \exp\left\{-4(\omega_0'-\omega_0)^2/\Delta^2\right\}$$

und $$\mathcal{L}(\omega-\omega_0', \Gamma) = \frac{\Gamma/2\pi}{(\omega-\omega_0')^2 + \Gamma^2/4} \quad ,$$

wobei $\Delta = \frac{2\omega_0}{c}(2kT/M)^{1/2}$ und Γ die Halbwertsbreite ist.

Die Form des Profils wird vollständig durch das Verhältnis Δ / Γ festgelegt. Voigt-Profile können nicht auf eine analytische Form gebracht werden. Für die Auswertung von Linien existieren jedoch umfangreiche Tabellenwerke /12/.

Für einige infrarote Xenon-Laserübergänge existieren detaillierte Untersuchungen über Druckverschiebung und Druckverbreiterung der Verstärkungsprofile dieser Laserlinien /7/. Diese Untersuchungen zeigen, daß im untersuchten Druckbereich der Gauß-Anteil des Verstärkungsprofils konstant ist, und der Lorentz-Anteil für Drucke größer als 150 µbar linear zunimmt. Für Drucke unterhalb 150 µbar wurde ein nichtlinearer Verlauf beobachtet.

Unter der Annahme, daß die von uns untersuchten Xenonübergänge sich ähnlich wie o.g. IR-Laserübergänge verhalten, wurden unsere Messungen bei einem Druck von 10 µbar und gleichzeitiger Kühlung mit flüssigem Stickstoff durchgeführt. Durch diese Maßnahmen sollten sowohl der temperaturabhängige Gauß- als auch der druckabhängige Lorentz-Anteil am Profil der Sättigungslinien minimalisiert werden.

Zudem wurde der Bereich um die Resonanzzelle magnetfeldfrei gehalten. DC-Zeemann- und Stark-Aufspaltungen wurden durch Verwendung einer Mikrowellenentladung vermieden.
Eine Analyse der mit dem Offset-Locking-Verfahren gewonnenen Spektren bestätigt, daß die unter diesen Bedingungen gewonnenen Doppler-freien Linien sich in sehr guter Näherung mit Lorentz-förmigen Profilen beschreiben lassen.

Durch die konsequente Reduzierung aller bislang in diesem Kapitel diskutierten Störeinflüsse konnten insbesondere die Linienbreite und Linienform der Sättigungsspektren sehr verbessert werden. Dieser Fortschritt wird durch die beiden folgenden Abbildungen 10 und 11 in anschaulicher Weise dokumentiert. Erst nach diesen Verbesserungen war es möglich, die Isotopieverschiebungen mit einem Fehler von weniger als 500 kHz zu bestimmen.

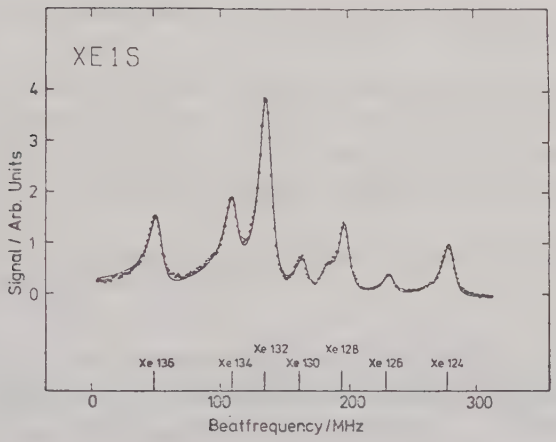

Abb. 10 Offset-Locking-Sättigungsspektrum eines in den Isotopen ^{128,126,124}Xe angereicherten Isotopengemischs aufgenommen im 467 nm-Übergang vor Beginn der Beseitigung der Störeinflüsse (Gasdruck, Laserlichtleistung).

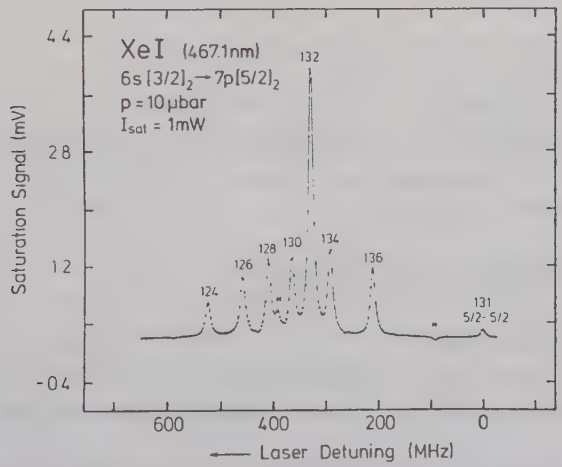

Abb. 11 Offset-Locking-Sättigungsspektrum eines angereicherten Xe-Isotopengemischs (Isotopenhäufigkeit nach Kap. 4, ^{127}Xe-Probe in Tab. 2) aufgenommen im 467 nm-Übergang unter optimalen Druck- und Laserlichtleistungsverhältnissen. Linienform und Frequenzauflösung sind deutlich verbessert.

5.6 EINZELBEITRÄGE ZUR LINIENBREITE

Die Breite der Sättigungslinien setzt sich aus mehreren Beiträgen zusammen. Bei einer typischen experimentellen Linienbreite von 9(1) MHz für den 467 nm-Übergang sind folgende Verbreiterungsmechanismen wirksam:

A) natürliche Linienbreite: $\Delta\nu_{NAT} = \frac{1}{2\pi\gamma}$

Der Einfluß der Lebensdauer des metastabilen $6s\,|3/2|_2$ - Niveaus auf die natürliche Linienbreite ist gegenüber dem des $7p\,|5/2|_3$ - Niveaus zu vernachlässigen. Für die Berechnung von $\Delta\nu_{NAT}$ ist also nur die Lebensdauer des oberen Niveaus relevant. Mit $T_{1/2} \approx 150$ ns erhält man:

$$\Delta\nu_{NAT} = 1 \text{ MHz}.$$

B) Winkel- oder geometrische Verbreiterung:

$$\Delta\nu_{GEO} = 0.6\,\theta\,\Delta\nu_D$$

Durch den experimentell bedingten Winkel θ = 5 mrad zwischen Sättigungs- und Abtaststrahl werden alle Linien um den folgenden Betrag verbreitert:

$$\Delta\nu_{GEO} = 2.5 \text{ MHz}.$$

C) Druckverbreiterung:
Nach eigenen Messungen (siehe Abb. 3) beträgt die mögliche Restdruckverbreiterung bei einem Xenondruck von 10 µbar

$$\Delta\nu_p < 0.8 \text{ MHz}.$$

D) Leistungsverbreiterung:
Der Einfluß dieses Effekts auf die Linienbreite wurde experimentell für Lichtintensitäten von 0.5 mW/mm², 1 mW/mm² und 10 mW/mm² bestimmt. Aus den gemessenen Linienbreiten von 8(2) MHz, 9(1) MHz und 18(1) MHz wird die durch eine Leistung von 1 mW/mm² verursachte Verbreiterung zu $\leq$ 1 MHz abgeschätzt.

E) Sonstige Einflüsse wie

- Durchflugsverbreiterung $\Delta\nu_{FLUG} = \frac{0.58}{\pi r(1/e)}\sqrt{\frac{2kT}{M}}$

- Doppler-Effekt 2. Ordnung $\Delta\nu_D^{(2)} \approx \frac{kT}{mc^2}\nu_0$

- Magnetfeldverbreiterung

spielen in der vorliegenden Arbeit eine untergeordnete Rolle. Die hierdurch verursachten Verbreiterungen sind kleiner als 100 kHz und werden daher vernachlässigt.

F) Gasentladungseinflüsse:

Bildet man die Summe aller bisher behandelten Verbreiterungsbeiträge, so bleibt eine Diskrepanz von ca. 4 MHz zwischen den experimentell bestimmten Linienbreiten und den rechnerisch ermittelten Linienbreiten.
Diese Differenz wird Gasentladungseinflüssen zugeschrieben. In der Literatur ist dieser Effekt auch als Holtzmark-Verbreiterung bekannt. Für das Verständnis dieses Effekts spielen mikroskopische elektrische Felder der Ladungsträger eine wichtige Rolle.

REFERENZEN

/1/ D.A. Jackson: J.Opt.Soc.Am. **66**, 1014 (1976)

/2/ H.J. Cornelissen, A.L.J. Burgmans: Opt. Com. **41**, 187 (1982)

/3/ G.N. Gerasimov, S.Y. Petrov: Opt. Spectr. **41**, 108 (1976)

/4/ D.H. Schwamb: Phys. Lett. **71 A**, 420 (1979)

/5/ W.H. King: J.Opt.Soc.Am **53**, 838 (1963)

/6/ R. Vetter, E. Marie: J.Phys. **B 11**, 2845 (1978)

/7/ G. Borghs, P. De Bisshop, R. E. Silverans, M. van Hove, J. M. van den Cruyce: Z. Physik **A 299**, 11 (1981)

/8/ S.N. Jabr, W.R. Bennett: Phys. Rev. **A 21**, 1518 (1980)

/9/ W. Demtröder: Laser Spectroscopy, Springer Verlag, Berlin-Heidelberg-New York (1981)

/10/ S. Nakayama, G.W. Series, W. Gawlik: Opt. Com. **34**, 382 (1980)

/11/ H. Rinneberg, T. Huhle, E. Matthias, A. Timmermann: Z. Phys. **A. 295**, 17 (1980)

/12/ H. G. Kuhn: Atomic Spectra, Longmans-Green+Co., London (1962)

6. ISV- UND HFS-MESSDATEN

6.1 EINLEITUNG

6.2 ISV ZWISCHEN STABILEN XE-ISOTOPEN MIT GERADER NEUTRONENZAHL

6.3 HFS- UND ISV-UNTERSUCHUNG AN STABILEN UND RADIOAKTIVEN XE-ISOTOPEN MIT UNGERADER NEUTRONENZAHL IM 467 NM- UND 462 NM-ÜBERGANG

6.4 HFS- UND ISV-UNTERSUCHUNG IM 458 NM-ÜBERGANG VON XENON

6.5 ISV ZWISCHEN STABILEN QUECKSILBERISOTOPEN MIT GERADER NEUTRONENZAHL IN DEN OPTISCHEN ÜBERGÄNGEN BEI 436 NM UND 546 NM

6.1 EINLEITUNG

Isotopieverschiebungs- und Hyperfeinstrukturuntersuchungen wurden an der 467 nm-Linie ($6s|3/2|_2 \rightarrow 7p\ |5/2|_3$) begonnen und im Verlauf dieser Arbeit auf den 462 nm-Übergang ($6s|3/2|_2 \rightarrow 7p|3/2|_2$) ausgedehnt. Zur weiteren Absicherung der ISV-Daten wurden zum Schluß die Übergänge bei 450 nm ($6s|3/2|_2 \rightarrow 6p'|1/2|_1$) und 458 nm ($6s|3/2|_1 \rightarrow 6p'|1/2|_0$) in die Messungen miteinbezogen.

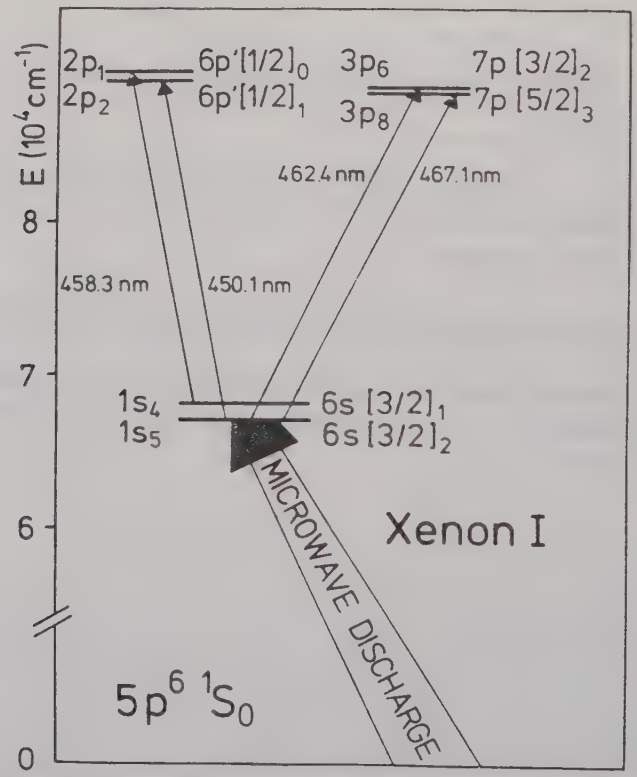

Abb. 1 Ausschnitt aus dem Xe-Termschema mit Darstellung der untersuchten Übergänge und der Anregungsart der Ausgangsniveaus

Tab. 1 Lebensdauern einiger relevanter Energieniveaus

Niveau	$6s\|3/2\|_2$	$7p\|5/2\|_3$	$7p\|3/2\|_2$	$6p\|1/2\|_1$	$6s\|3/2\|_1$	$6p'\|1/2\|_0$
Lebens-dauer (ns)	1000 metastab.	141(10)	148(11)	43.5(15)	3.46(9)	38.5(15)
Ref.	1	2	2	2	3	2

Die Untersuchung des 458 nm-Übergangs ist aus zwei weiteren Gründen interessant: zum einen kann an dieser Linie gezeigt werden,daß die Sättigungsspektroskopie empfindlich genug ist, um ISV- und HFS-Untersuchungen auch an Übergängen zwischen kurzlebigen Niveaus durchzuführen. Zum zweiten soll an diesem speziellen Übergang geprüft werden, inwieweit die einfachere Hyperfeinstruktur solcher Übergangstypen (J = 1 nach J = 0) die Linienzuordnung in den Spektren erleichtert.

Zur Überprüfung des Isotonischen Plots und des Zusammenhangs zwischen ISV und der Änderung der Bindungsenergie pro Nukleon im Bereich schwerer Elemente ($A \approx 200$) wurden zusätzlich ISV-Messungen an stabilen Quecksilberisotopen durchgeführt.

6.2 ISV ZWISCHEN STABILEN XENONISOTOPEN MIT GERADER NEUTRONENZAHL

Das Edelgas Xenon besitzt unter anderem 7 stabile Isotope mit gerader Neutronenzahl und Kernspin I = 0 (siehe Tab. 1, Kapitel 2). Die optischen Übergänge für diese Isotope zeigen daher keine Hyperfeinstrukturaufspaltung, d.h. sie bestehen jeweils aus einer Linie. Dieser Umstand erleichtert die Auswertung der ISV-Daten.

Mit Ausnahme der seltenen Isotope ^{124}Xe und ^{126}Xe treten alle übrigen Isotope in ausreichender Häufigkeit im natürlichen Xenonisotopengemisch auf, so daß deren Nachweis (Nachweisgrenze $\approx$ 0.1 % Häufigkeit) keine Schwierigkeiten bereitet. Die Sättigungssignale der Isotope ^{124}Xe (0.096 %) und ^{126}Xe (0.09 %) konnten im natürlichen Isotopengemisch erst durch Mitteln mehrerer Einzelspektren, dann jedoch mit gutem Signal/Rausch-Verhältnis, gewonnen werden.

Abb. 2 zeigt ein Sättigungsspektrum eines natürlichen Gemischs von Xenonisotopen am Beispiel des 462 nm-Übergangs. Die Signale für die Isotope ^{124}Xe und ^{126}Xe sind nicht erkennbar, während die Signalhöhe der übrigen geraden Isotope ihrer natürlichen Häufigkeit entspricht.

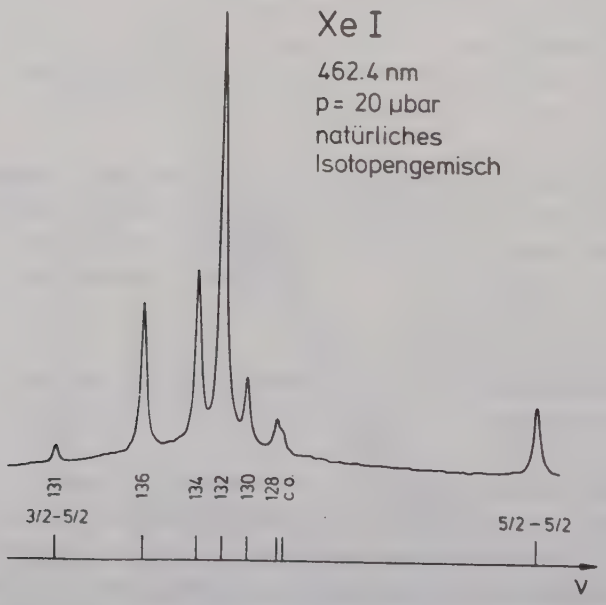

Abb. 2 Sättigungsspektrum eines natürlichen Xe-Isotopengemischs im Bereich der geraden Isotope im 462 nm-Übergang

In Abb. 3 ist die Mitte des 467 nm-Übergangs vergrößert und mit besserem Signal/Rausch-Verhältnis dargestellt. Es sind nun die Signale der Isotope ^{124}Xe und ^{126}Xe sowie positive und negative Cross-Over-Signale (siehe Kapitel 4.2.1) zu erkennen. Die in Abb. 2 und Abb. 3 gezeigten Spektren dienten zur Übersicht und zur Optimierung des Laserspektrometers vor Beginn der eigentlichen Messungen.

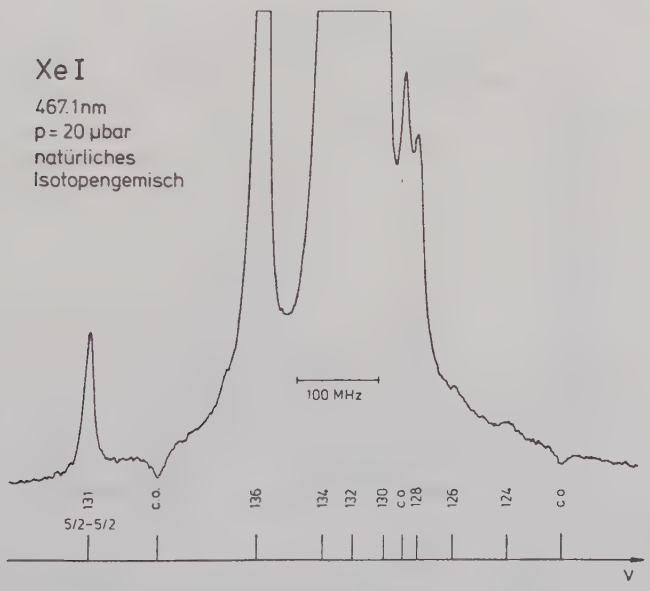

Abb. 3 Ausschnitt eines Sättigungsspektrums des 467 nm-Übergangs im Bereich der geraden Xenonisotope. Mit verbessertem Signal/Rausch-Verhältnis werden jetzt auch die seltenen Isotope $^{124,126}Xe$ sichtbar.

Die folgenden drei Abbildungen 4, 5 und 6 zeigen typische Offset-Locking-Spektren der radioaktiven ^{127}Xe-Probe im Bereich der Isotope mit gerader Neutronenzahl in den Übergängen bei 467 nm, 462 nm und 450 nm. Diese Spektren wurden mit der in Kapitel 4 näher beschriebenen Offset-Locking-Technik mit einer Frequenzschrittweite von 0.1 MHz vermessen.

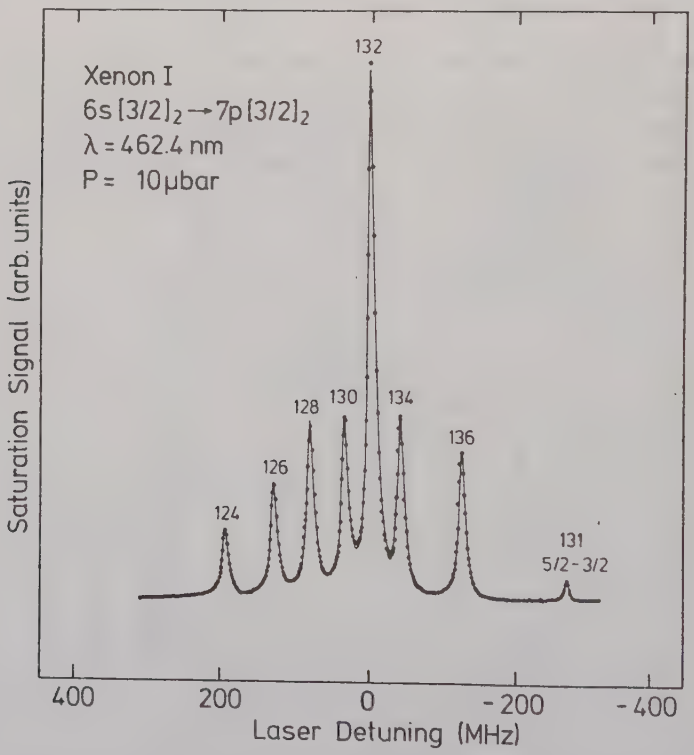

Abb. 4 Offset-Locking-Sättigungsspektrum aller stabilen Xe-Isotope mit gerader Neutronenzahl im 462 nm-Übergang. Die Isotopenzusammensetzung entspricht der ^{127}Xe-Probe nach Tabelle 2, Kapitel 4.

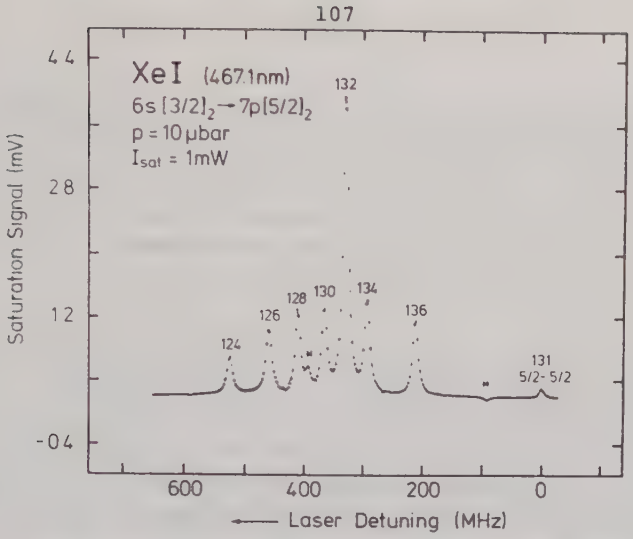

Abb. 5 Offset-Locking-Sättigungsspektrum aller stabilen Xe-Isotope mit gerader Neutronenzahl im 467 nm-Übergang. Die Isotopenzusammensetzung entspricht der ^{127}Xe-Probe nach Tab. 2, Kapitel 4.

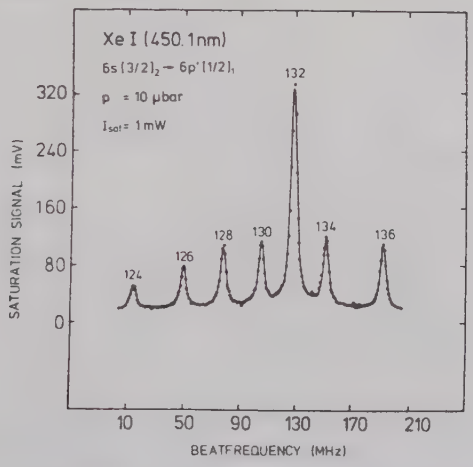

Abb. 6 Offset-Locking-Sättigungsspektrum aller stabilen Xe-Isotope mit gerader Neutronenzahl im 450 nm-Übergang. Die Isotopenzusammensetzung entspricht der ^{127}Xe-Probe nach Tab. 2, Kapitel 4.

Die Isotopenzusammensetzung dieser Probe weicht vom natürlichen Vorkommen stark ab (vgl. Tab. 2, Kapitel 4.3.4). Mit Ausnahme des ^{132}Xe-Signals ergeben sich ähnliche Signalintensitäten für alle Isotope mit gerader Neutronenzahl. Dies begünstigt eine genaue Bestimmung der ISV, da die Überlagerung der Einzelsignale gleichmäßig ist.

Alle drei Übergänge haben das $6s|3/2|_2$-Niveau (metastabil) gemeinsam. Während die 467 nm- und 462 nm-Übergänge in die 7p-Niveaus führen, endet der 450 nm-Übergang in der 6p'-Konfiguration. Letzterer Übergang weist eine größere ISV (ca. 30 %) und auch größere Linienbreiten auf, die durch die kürzere Lebensdauer des 6p'-Niveaus verursacht werden.

In der folgenden Tabelle 3 sind die experimentell ermittelten Isotopieverschiebungswerte für den 467 nm-, 462 nm- und den 450 nm-Übergang zusammengestellt. Alle ISV-Daten dieser Tabelle sind Mittelwerte aus 4 bis 10 Einzelmessungen. Die angegebenen Fehler beschreiben die maximale Abweichung einzelner Meßwerte vom jeweiligen Mittelwert. Die Ergebnisse anderer Autoren sind zu Vergleichszwecken aufgeführt.

Die in dieser Arbeit gewonnenen Xenon-ISV-Daten sind die genauesten Daten, die bisher veröffentlicht wurden. Die Genauigkeit älterer ISV-Daten konnte um mehr als eine Größenordnung verbessert werden.

Tab. 2 Gemessene Isotopieverschiebung $\Delta\nu_{Exp} = \nu(A) - \nu(A')$, $A > A'$, alle Werte in MHz. Zum Vergleich sind die Meßwerte anderer Autoren mitaufgeführt.

A,A'	$6s\,|3/2|_2 - 7p\,|5/2|_3$		$6s\,|3/2|_2 - 7p\,|3/2|_2$		$6s\,|3/2|_2 - 6p'|1/2|_1$	
	467 nm (MHz)		462 nm (MHz)		450 nm (MHz)	
136,134	-80,3(6)	-88(6)	-81,2(3)	-87(7)	-114,5(3)	-129(7)
134,132	-36,5(3)	-37(9)	-36,9(3)	-33(7)	- 63,9(3)	- 52(6)
132,130	-36,3(3)	-27(8)	-36,7(3)	-39(6)	- 64,2(4)	- 70(10)
130,128	-44,7(5)	-65(10)	-44,9(5)	-57(10)	- 74,8(4)	- 78(12)
128,126	-48,5(3)	-------	-48,8(3)	-------	- 80,3(3)	-------
126,124	-65,2(4)	-------	-66,0(3)	-------	-100,1(2)	-------
Ref.	diese Arbeit	Jackson/4/ Coulombe	diese Arbeit	Jackson/4/ Coulombe	diese Arbeit	Jackson/41 Coulombe

Die Genauigkeit der ISV-Daten wird im King-Diagramm der Abb. 7 deutlich sichtbar. Zum einen wird dadurch die Konsistenz der ISV-Daten dieser Arbeit untereinander gezeigt, zum anderen (unterer Teil von Abb. 7 und Abb. 5, Kapitel 5) können Meßfehler anderer Autoren entdeckt werden. In Tab. 3 sind einige Beispiele von Meßfehlern zusammengestellt.

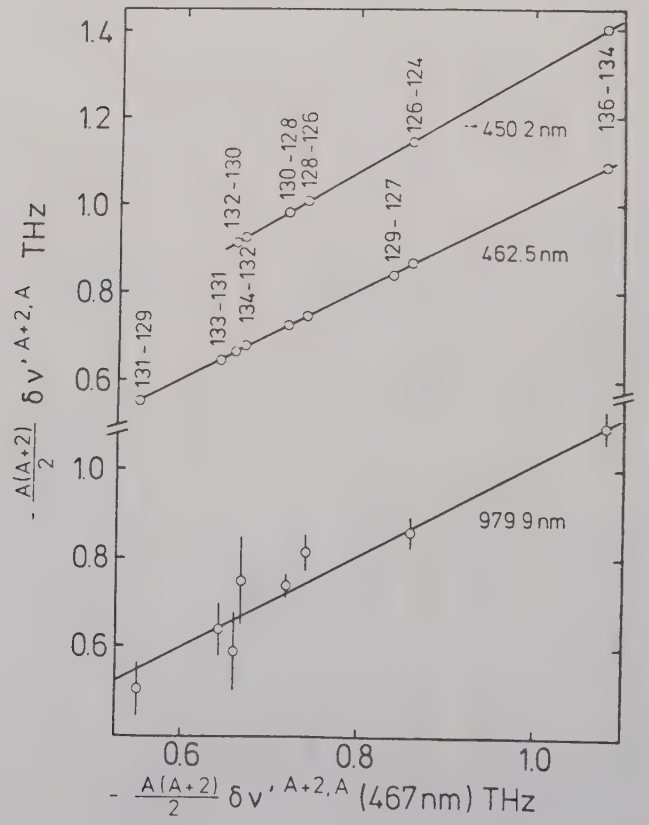

Abb. 7 King-Plot optischer ISV-Daten

Tab. 3 Fehlerhafte ISV-Daten

Übergang (nm)	Fehlerhaftes Paar	Referenz
979.9	^{128,126}Xe	Fischer et al. /9/
605.1	^{132,130}Xe	Borghs et al. /10/
3996.6	^{126,124}Xe	Vetter et al. /11/

6.3 HFS- UND ISV-UNTERSUCHUNG AN STABILEN UND RADIOAKTIVEN XENONISOTOPEN MIT UNGERADER NEUTRONENZAHL IM 467 NM- UND IM 462 NM-ÜBERGANG

Neben den 7 stabilen Isotopen mit gerader Neutronenzahl und Kernspin I = 0 besitzt das Element Xenon auch zwei stabile Isotope mit ungerader Neutronenzahl und Kernspin I = 0. Alle übrigen Xe-Isotope sind radioaktiv. Die Spektrallinien der Isotope mit ungerader Neutronenzahl zeigen eine Hyperfeinstruktur, die sich auf einen Frequenzbereich von ungefähr 3 GHz um das Zentrum des optischen Übergangs verteilt.

Die HFS-Aufspaltung des Ausgangsniveaus ($6s\,|3/2|_2$) ist aus ABMR-Messungen /5/ mit sehr großer Genauigkeit bekannt. Die Untersuchung der Endniveaus bleibt jedoch optischen Methoden vorbehalten, da es nicht gelingt, eine für ABMR-Messungen ausreichende Besetzungsdichte herzustellen. Aus demselben Grund sind ABMR-Messungen an radioaktiven Isotopen nicht durchführbar.

Die radioaktiven Isotope $^{127,133}Xe$ sind Nachbarn der stabilen Isotope $^{129,131}Xe$. Sie eignen sich daher idealerweise zur Verfolgung der Kerneigenschaften ungerader Xenonisotope sowohl zu größeren als auch zu kleineren Neutronenzahlen hin.

Vor Beginn dieser Arbeit war das magnetische Dipolmoment von ^{127}Xe unbekannt, während vom ^{133}Xe aus einer interferometrischen Messung sowohl das magnetische Moment als auch das elektrische Quadrupolmoment bekannt waren /6/. Im Verlaufe der vorliegenden Arbeit konnte die HFS aller vier Isotope um etwa eine Größenordnung genauer bestimmt werden. Mit entsprechend höherer Genauigkeit konnten daraus die Kernmomente der radioaktiven Isotope abgeleitet werden. Aus der Analyse der HFS-Daten konnten ferner die relativen Schwerpunktslagen der ungeraden Xe-Isotope bestimmt und aus den Differenzen dieser Lagen die ISV berechnet werden.

Die drei folgenden Abbildungen zeigen die wesentlichen Teile der HFS der Isotope $^{127,129,131,133}Xe$ in den Übergängen bei

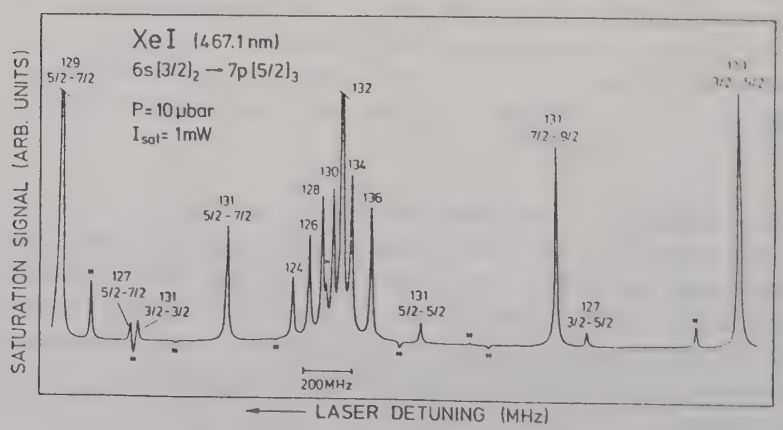

Abb. 7 Sättigungsspektrum einer ^{127}Xe-Probe im optischen Übergang bei 467 nm

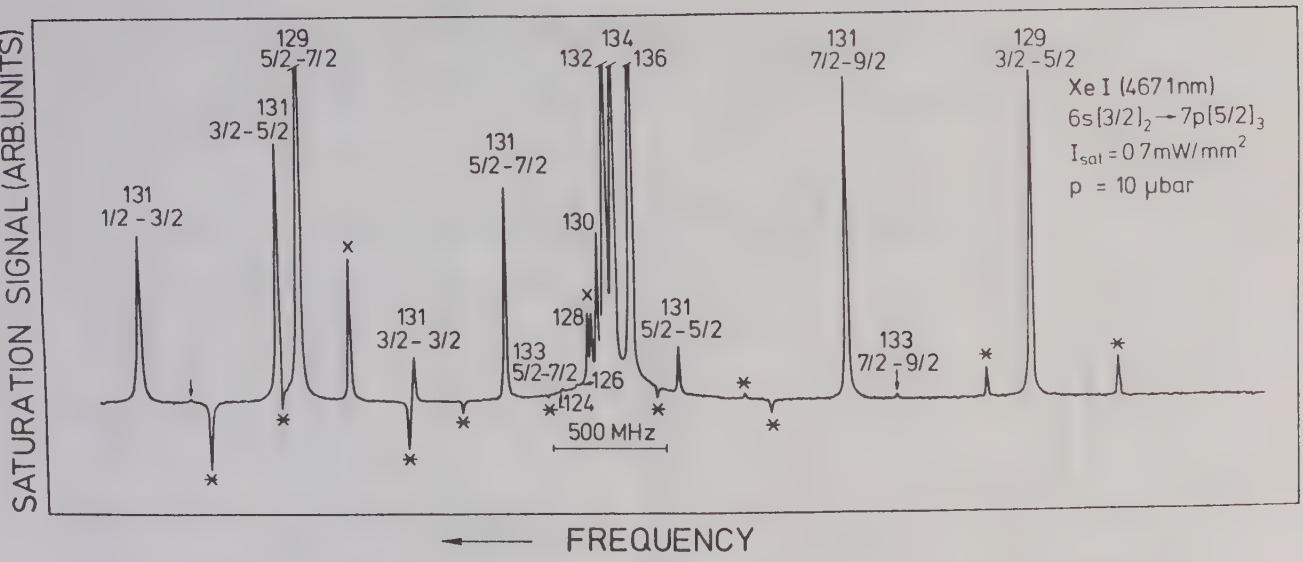

Abb. 8 Sättigungsspektrum einer ^{133}Xe-Probe im optischen Übergang bei 467 nm. Die Isotopenzusammensetzung ist in Tab. 2, Kapitel 4 wiedergegeben.

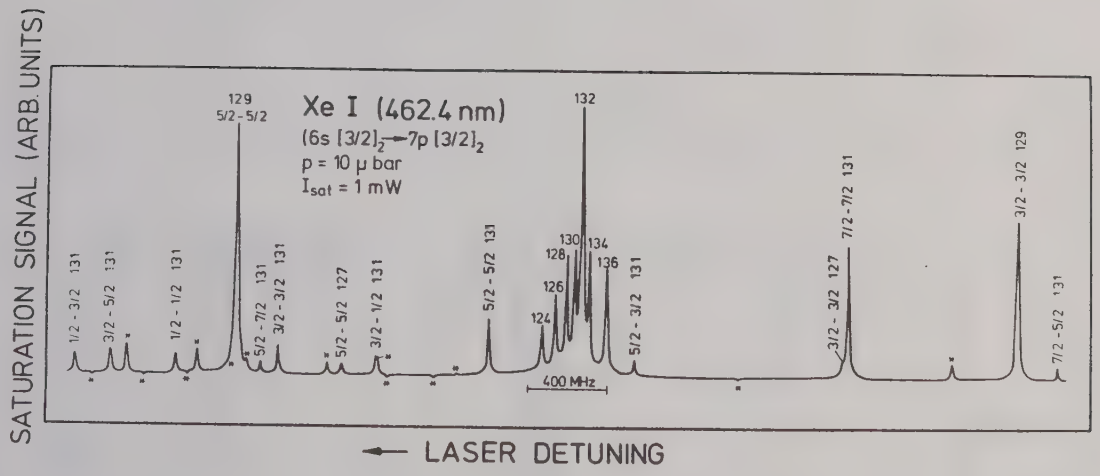

Abb. 9 Sättigungsspektrum einer ^{127}Xe-Probe im optischen Übergang bei 462 nm. Die Isotopenhäufigkeiten sind in Tab. 2, Kapitel 4 zusammengestellt.

In der Mitte der Spektren in Abbildung 7 bis 9 befinden sich jeweils die Signale der Isotope mit gerader Neutronenzahl. Bevor die Untersuchung der radioaktiven Isotope in Angriff genommen werden konnte, mußten zunächst die Frequenzlagen aller Hyperfeinlinien sowie aller Cross-Over-Signale der stabilen Isotope gefunden und zugeordnet werden. Dies war notwendig, um Verwechslungen mit den erwartungsgemäß kleinen Signalen der radioaktiven Isotope auszuschließen.

Insbesondere beim ^{133}Xe (5.3 d, I = 3/2) mußten alle Hyperfeinlinien gemittelt werden. Ohne dieses Verfahren (siehe Kap. 4.1.4) wäre es nicht möglich gewesen, die HFS und ISV der radioaktiven Isotope zu bestimmen. Als Bezugslinie wurde dabei immer eine bereits bekannte Linie eines stabilen Isotops verwendet.

Im folgenden sollen die Übersichtsspektren (siehe Abb. 7, 8 und 9), die die gesuchten ^{127}Xe-Signale enthalten, etwas näher erläutert werden:
Neben einer Vielzahl von Hyperfeinlinien und Cross-Over - Linien der stabilen Isotope erkennt man in Abb. 7 zwei Linien, die dem Isotop ^{127}Xe (36.4 d, I = 1/2) zuzuordnen sind. Eine letzte,
allerdings sehr schwache, Linie (5/2--5/2) liegt außerhalb des abgebildeten Frequenzbereichs.

Abb. 9 zeigt den 462 nm-Übergang derselben Xenonprobe (^{127}Xe). Man erkennt zwei der vier möglichen Hyperfeinlinien des Isotops ^{127}Xe. Die nicht sichtbaren Komponenten (5/2--3/2 und 3/2--5/2) liegen jeweils am oberen bzw. unteren Ende des Gesamtspektrums.
Durch fünfzigfaches Mitteln konnten diese hier nicht sichtbaren Linien mit gutem Signal/Rausch-Verhältnis gewonnen werden. Abb. 10 zeigt am Beispiel der ^{127}Xe-(5/2--3/2)-Komponente die Meßsignale vor und nach dem Mitteln.

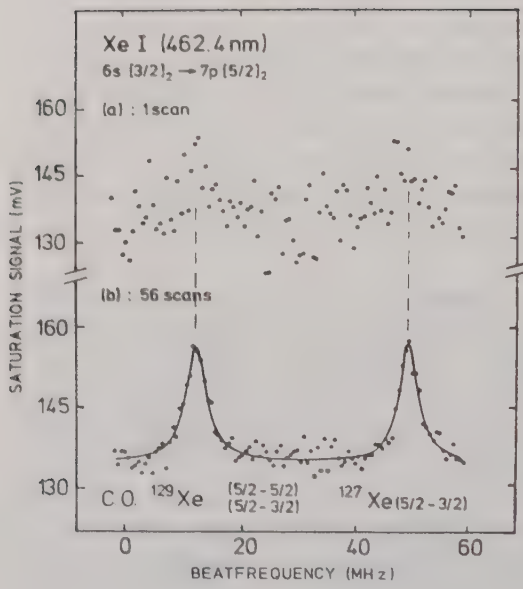

Abb. 10 Verbesserung des Signal/Rausch-Verhältnisses durch zeitliches Mitteln der Meßsignale. Im oberen Teil (a) ist das Sättigungssignal nach einem Durchlauf, bzw. im unteren Teil (b) nach 50 Durchläufen dargestellt.

Die Untersuchungen des ^{133}Xe-Isotops gestalten sich aus mehreren Gründen schwieriger als die des ^{127}Xe-Isotops. So beträgt die Halbwertszeit von ^{133}Xe nur 5.3 Tage. Von der Herstellung bis zum Spektroskopieren des Isotops vergehen durchschnittlich zwei Halbwertszeiten, so daß die Signalintensität während des Experiments nur noch ein Viertel der im Prinzip möglichen Intensität beträgt.

Wegen des Kernspins von I = 3/2 besteht die Hyperfeinstruktur des 467 nm-Übergang aus 9 Linien, d.h. es treten hier dreimal mehr Linien auf als beim ^{127}-Xe-Isotop. Zudem waren aus Herstellungsgründen alle ^{133}Xe-Proben mehr oder weniger mit natürlichem Xenonisotopengemisch verdünnt (vgl. Kap. 4.3.4). Dies erschwert die Auflösung von sehr nahe beieinanderliegenden Signalen unterschiedlicher Intensität.

Abb. 11 zeigt ein typisches Übersichtsspektrum einer ^{133}Xe-Probe des 467 nm-Übergangs. Die vier erkennbaren Hyperfeinlinien des ^{133}Xe-Isotops sind mit Pfeilen gekennzeichnet.Alle übrigen Linien gehören zu stabilen Isotopen oder deren Cross-Over-Signalen. Obwohl das Signal/Rausch-Verhältnis dieses Spektrums hervorragend ist -selbst die sehr seltenen Isotope ^{124,126}Xe (Häufigkeit 0.09%) sind deutlich zu erkennen- wäre es ohne systematisches Mitteln des Spektrums nicht gelungen, die Hyperfeinstruktur des ^{133}Xe-Isotops in diesem Übergang aufzuklären.

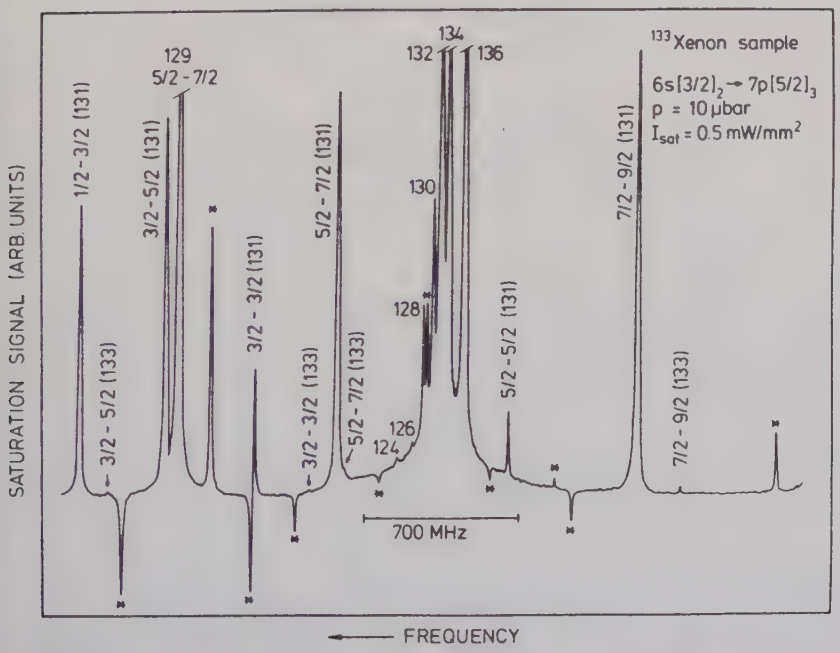

Abb. 11 Sättigungsspektrum einer mit natürlichem Xe-Gas verdünnten ^{133}Xe-Probe. Auffällig sind die großen negativen Cross-Over-Signale (*) und das Hervortreten der Signale der seltenen Isotope ^{124,126}Xe.

Die folgenden Abbildungen demonstrieren die durch Mitteln mehrerer Teilspektren erreichbare Steigerung der Nachweisempfindlichkeit an zwei ausgewählten Linien des ^{133}Xe-Isotops. Der obere Teil (a) der Abbildung zeigt jeweils das Spektrum ohne Mitteln, während der untere Teil (b) das gemittelte Spektrum darstellt.

Abb. 12 zeigt den in Abb. 11 eingekreisten Bereich des Spektrums mit stark vergrößerter Frequenzauflösung. Um das gemittelte Spektrum zu erhalten, wurde der Farbstofflaser 25 Mal über den dargestellten Frequenzbereich durchgestimmt.

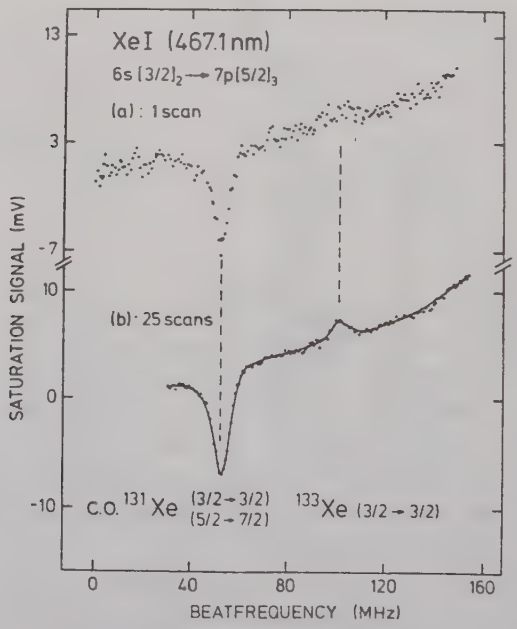

Abb. 12 Meßspektrum eines Teils von Abb. 11 zur Demonstration des zeitlichen Mittelns von Sättigungsspektren am Beispiel der 3/2-3/2 HFS-Komponente des radioaktiven ^{133}Xe-Isotops

Ein weiteres Beispiel für dieses Mittelungsverfahren ist in Abb. 13 dargestellt. In diesem Fall wurde ein relativ kleiner Frequenzbereich 56 Mal durchfahren. Dabei gelang es, die völlig im Rauschen verborgene Linie des 3/2--5/2 Übergangs des ^{133}Xe-Isotops aufzulösen. Das hier gezeigte Spektrum schließt an den linken Rand des Spektrums in Abb. 9 an.

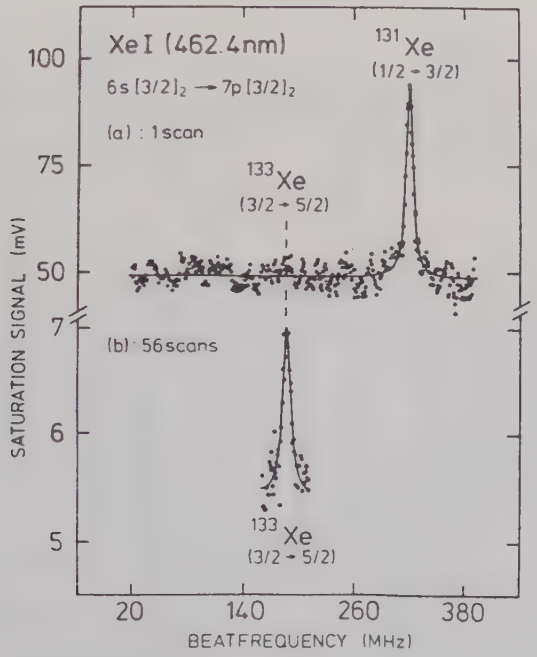

Abb. 13 Meßspektrum eines Teils von Abb. 9. Bei einmaligem Durchlauf des Lasers bleibt die 3/2-5/2 HF-Linie des radioaktiven Isotops ^{133}Xe unsichtbar. Erst mit zeitlichem Mitteln wird die Bestimmung der Frequenzlage dieser Linie möglich.

Abb. 14 und Abb. 15 zeigen die Energieschemata der Hyperfeinstrukturaufspaltung der Isotope $^{127,133}Xe$ und $^{129,131}Xe$. Sie enthalten die gesamte HFS-Information in Form von Aufspaltungsfrequenzen. Alle Aufspaltungswerte sind in MHz angegeben. Der Fehler beträgt maximal 0.5 MHz.

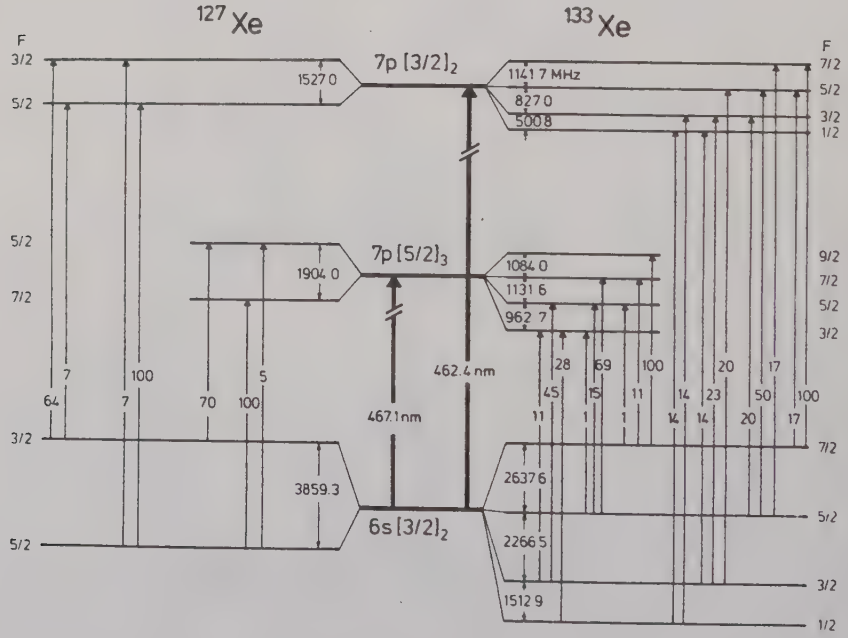

Abb. 14 HFS-Termschema für ^{127}Xe(36.4 d) und ^{133}Xe (5.3 d) für die optischen Übergänge bei 467 nm und 462 nm

Gerechnete Intensitäten einzelner Hyperfeinübergänge sind als relative Intensitäten ebenfalls in den Schemata enthalten. Die Auswertung der Aufspaltungsfrequenzen und die Bestimmung der Kernmomente werden im Kapitel 9 vorgenommen.

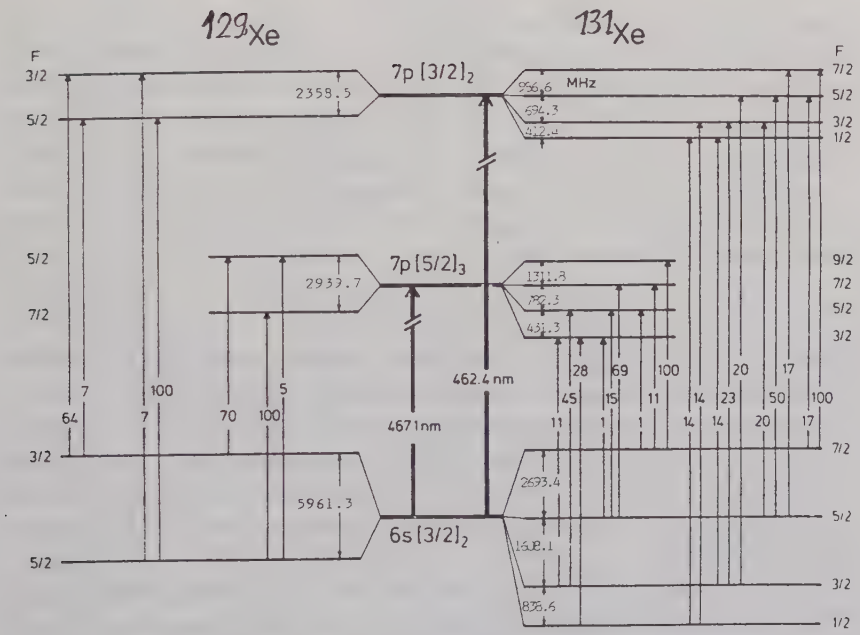

Abb. 15 HFS-Termschema für ^{129}Xe und ^{131}Xe für die optischen Übergänge bei 467 nm und 462 nm

6.4 HFS- UND ISV-UNTERSUCHUNG IM 458 NM-ÜBERGANG

Der bei 458 nm auftretende Übergang $6s\,|3/2|_1 \rightarrow 6p'\,|1/2|_0$ verbindet zwei kurzlebige Niveaus (vgl. Tab. 1). Insbesondere die Lebensdauer des Ausgangsniveaus ist mit ca. 4 ns sehr klein. Diese kurze Lebensdauer bestimmt nicht nur die Linienbreite, sondern reduziert gleichzeitig auch die Besetzungsdichte dieses Niveaus.

Das für die Spektroskopie Besondere an diesem Übergang liegt im Fehlen einer Hyperfeinstruktur des oberen Niveaus (J=0). Dadurch verringert sich die Anzahl der Hyperfeinlinien des Übergangs, wodurch wiederum die Linienzuordnung erleichtert wird. Durch die geringe Liniendichte können Linienüberlappungen vermieden werden. Dieser Vorteil kann bei der Untersuchung von Isotopen- oder Isomerengemischen unter Umständen ausschlaggebend sein.

Mit den Messungen in diesem Übergang soll auch gezeigt werden, daß die Sättigungsspektroskopie empfindlich genug ist, um selbst bei Verwendung nicht metastabiler Niveaus brauchbare Spektren zu liefern. Das Ausgangsniveau $6s\,|3/2|_1$ wird in der Gasentladung durch Spontanzerfall aus höher liegenden Niveaus, resonanten Strahlungseinfang oder durch Stöße mit dem benachbarten metastabilen $6s\,|3/2|_2$-Niveau besetzt /7/.

Abb. 16 zeigt ein Übersichtsspektrum dieses Übergangs. Trotz der großen Linienbreite von ca. 40 MHz gelingt es, die Hyperfeinstruktur der Isotope $^{129,131}Xe$ vollständig aufzulösen. Die geraden Xenonisotope konnten bis auf das Paar $^{136,132}Xe$ nicht aufgelöst werden.

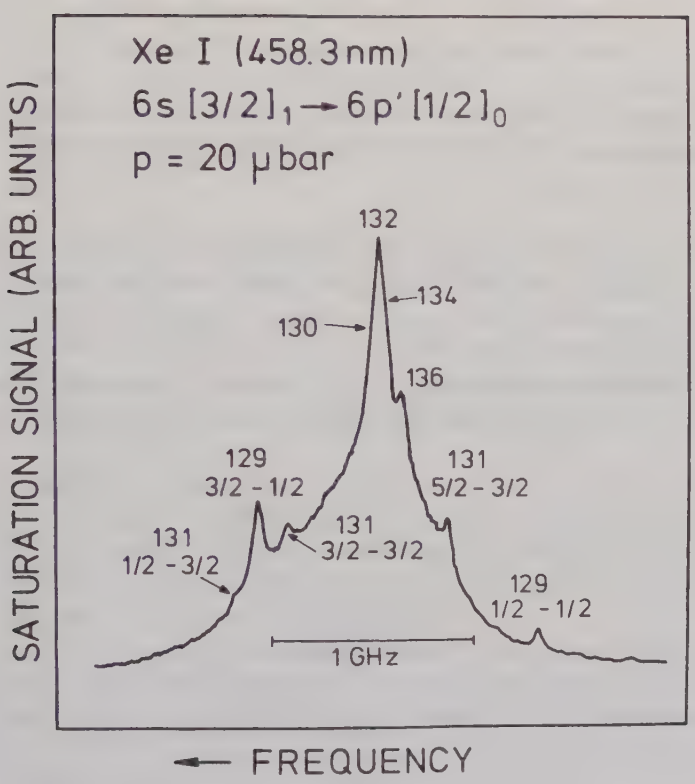

Abb. 16 Sättigungsspektrum eines natürlichen Xe-Isotopengemischs im 458 nm-Übergang. Die Signale für die geraden Isotope sind bis auf ^{132}Xe und ^{136}Xe wegen der großen Linienbreite nur als Linienasymmetrien erkennbar.

Um eine kleinere Linienbreite und damit eine höhere Auflösung zu erhalten, wäre es günstiger, einen Übergang mit J = 0 im Ausgangsniveau zu verwenden. Der bei 820 nm auftretende Übergang $6s\,|1/2|_0 \rightarrow 6p'\,|1/2|_1$ bietet sich hierfür an. Da in diesem Fall das Ausgangsniveau metastabil ist, darf

man zum einen eine hohe Besetzungsdichte erwarten und wegen der Lebensdauern der beteiligten Niveaus zudem eine Linienbreite von ca. 15 MHz. Mit dem vorliegenden Laserspektrometer konnte dieser IR-Übergang jedoch nicht untersucht werden.

Abb. 17 zeigt ein Schema der Hyperfeinstrukturaufspaltung der Isotope $^{129,131}Xe$ im 458 nm-Übergang. Alle Aufspaltungsfrequenzen sind in MHz angegeben. Die Fehler der Werte betragen jeweils 1.5 MHz.
Die Isotopieverschiebung in diesem Übergang konnte quantitativ nur für das Paar $^{136,132}Xe$ ermittelt werden:

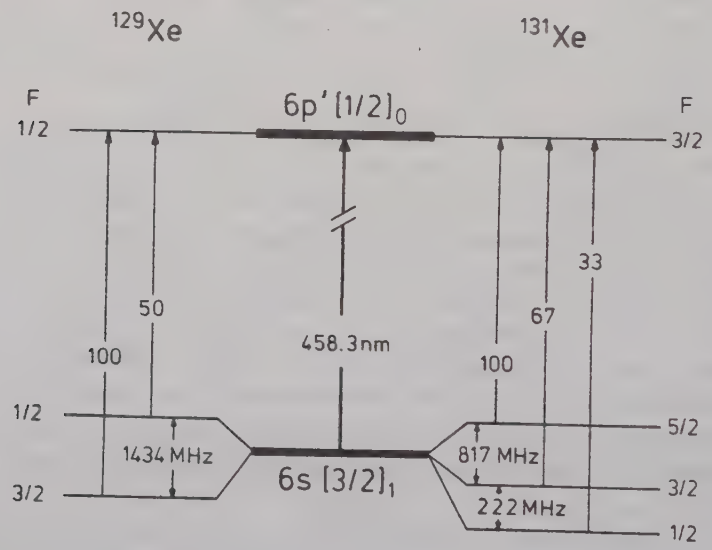

Abb. 17 HFS-Termschema der Isotope ^{129}Xe und ^{131}Xe für den 458 nm-Übergang

6.5 ISV ZWISCHEN STABILEN QUECKSILBERISOTOPEN MIT GERADER NEUTRONENZAHL IN DEN OPTISCHEN ÜBERGÄNGEN BEI 436 NM UND 546 NM

Die Messung der ISV stabiler Quecksilberisotope im Rahmen dieser Arbeit erfolgt im wesentlichen aus zwei Gründen:

1. Überprüfung des isotonischen Plots (vgl. Kapitel 7)
2. Überprüfung des Zusammenhangs zwischen ISV und Änderung der Bindungsenergie pro Nukleon (vgl. Kapitel 7).

Beide Punkte sollten mit möglichst genauem Datenmaterial auch im schweren Massenbereich ($A \approx 200$) überprüft werden. Daneben war es natürlich reizvoll, die Genauigkeit und Empfindlichkeit des Laserspektrometers an einem klassischen Beispiel der ISV zu demonstrieren.

Die sättigungsspektroskopischen Messungen wurden in zwei Übergängen im natürlichen Hg-Isotopengemisch durchgeführt:

$$6s6p\,^3P_1 \longrightarrow 6s7s\,^3S_1 \quad (\lambda = 436\ \text{nm})$$

$$6s6p\,^3P_2 \longrightarrow 6s7s\,^3S_1 \quad (\lambda = 546\ \text{nm}) \quad .$$

Die Ausgangsniveaus $^3P_1$ und $^3P_2$ wurden wie bei den Experimenten am Xenon über Mikrowellenentladungen in Quarzzellen bevölkert. Der Hg-Gasdruck wurde durch Kühlung eines Seitenarms der Zelle auf ca. 10 µbar eingestellt.

Abb. 18 zeigt den relevanten Ausschnitt des Hg-Termschemas.

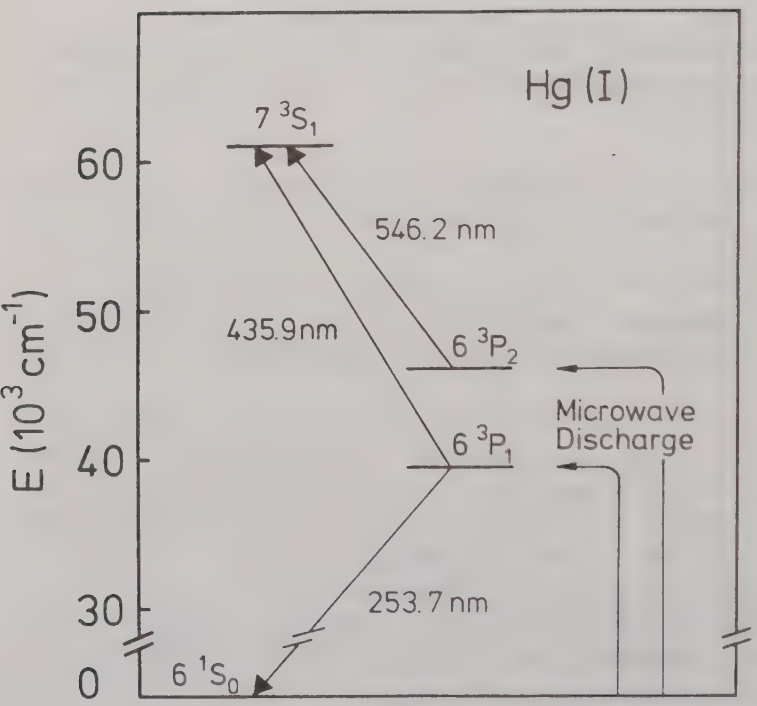

Abb. 18 Ausschnitt aus dem Quecksilber-Termschema mit schematischer Darstellung der untersuchten Übergänge und der Anregungsniveaus

Abb. 19 und Abb. 20 zeigen die Sättigungsspektren der Übergänge bei 436 nm und 546 nm.

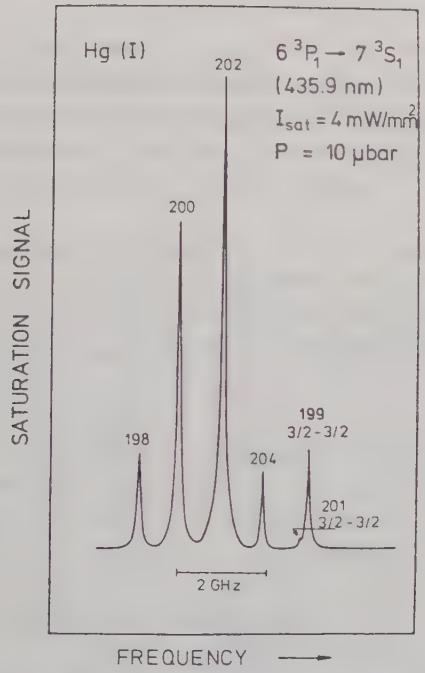

Abb. 19 Sättigungsspektrum des Hg-Übergangs bei 436 nm. Die verwendete Sättigungsleistung von 4 mW führt bereits zur Verbreiterung der Sättigungssignale.

Abb. 21 zeigt ein Spektrum des 546 nm-Übergangs, das mit einem 10 m-Monochromator vermessen wurde. Das Sättigungsspektrum von Abb. 20 zeigt zum Vergleich die extrem hohe Auflösung, die mit laserspektroskopischen Methoden im selben Übergang erreicht werden kann. Während die Signalhöhen von Abb. 19 die natürliche Zusammensetzung der Quecksilberisotope wiederspiegeln, zeigt Abb. 20 drastische Abweichungen der Isotopenhäufigkeiten. Der Grund hierfür liegt in der wesentlich höheren Besetzungsdichte des metastabilen $^3P_2$-Niveaus. Dies hat zur Folge, daß der Quecksilberdampf bei den Frequenzen der mit großer Häufigkeit vorkommenden Isotope ^{202}Hg (29.8%) und ^{200}Hg (23.1 %) optisch "dicht" wird. Die relativen Signalhöhen für die verbleibenden Isotope stimmen mit den aus der Literatur bekannten Häufigkeiten überein.

Abb. 20 Sättigungsspektrum des Hg-Übergangs bei 546 nm. Neben einzelnen Hyperfeinlinien der Isotope ^{199,201}Hg sind alle geraden Hg-Isotope erkennbar.

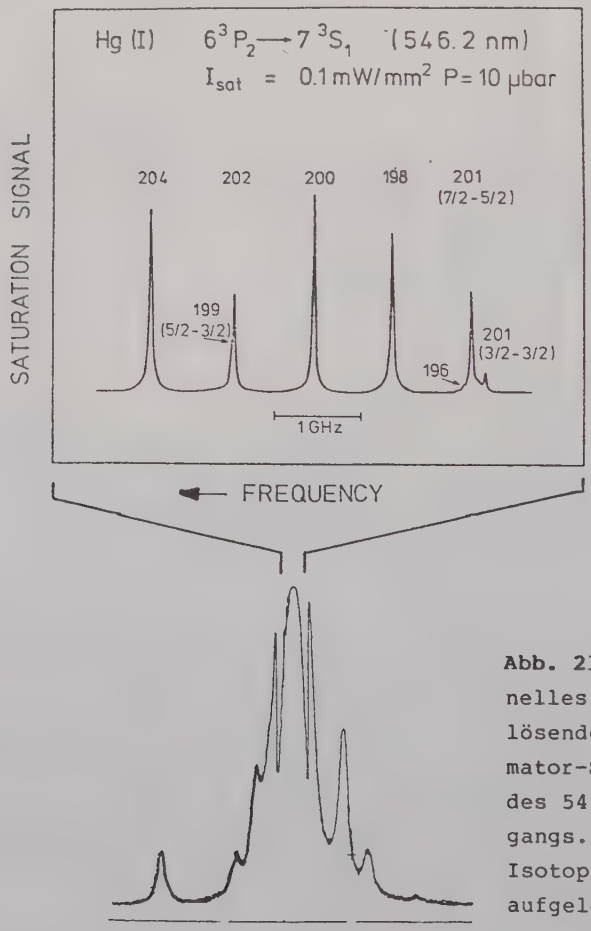

Abb. 21 Konventionelles, hochauflösendes Monochromator-Spektrum des 546 nm-Übergangs. Die geraden Isotope sind nicht aufgelöst.

In den Spektren von Abb. 19 und Abb. 20 liegen im Bereich der geraden Isotope einige HFS-Linien der ungeraden, stabilen Isotope, so daß im Prinzip auch die ISV der ungeraden Isotope bestimmt werden könnte, was aber hier nicht weiter verfolgt wurde.

Leistungsdichten des Sättigungsstrahls von mehr als 1 mW/mm² in der blauen Linie und von mehr als 100 µW/mm² in der grünen Linie bei 546 nm führen bereits zu deutlichen Verbreiterungen der Sättigungssignale. Eine untere Grenze für die Linienbreite von ca. 35 MHz wird mit einer Leistungsdichte von 10 µW/mm² erreicht. Aus den Lebensdauern der beteiligten Niveaus würde man eine Linienbreite von 20 MHz erwarten. Die Abweichung des experimentellen Werts beträgt unter Berücksichtigung der wichtigsten Verbreiterungsmechanismen (vgl. Kapitel 5) ca. 5 bis 10 MHz. Diese Diskrepanz muß wie beim Xenon als Einfluß der Gasentladung interpretiert werden /8/.

Die folgende Tabelle 4 zeigt eine Zusammenfassung der experimentell ermittelten Quecksilber-ISV-Daten für die Übergänge bei 436 nm und 546 nm. Die ISV ist positiv, d.h. das Isotop mit der größeren Masse liegt bei der höheren Frequenz. Alle Werte sind in MHz angegeben. Der Fehler beträgt jeweils 1.5 MHz.

$\Delta\nu_{EXP}^{A,A'}$	204 - 202	202 - 200	200 - 198	198-196
λ = 436 nm	880,9(15)	895,4(15)	815,2(15)	713,3(15)
λ = 546 nm	913,9(15)	931,3(15)	845,5(15)	740,0(15)

Tab. 4 Gemessene Isotopieverschiebung $\Delta\nu_{EXP} = \nu(A) - \nu(A')$

$A > A'$ aller stabilen, geraden Hg-Isotope in den Übergängen bei 436 nm und 546 nm

Abb. 22 demonstriert die Genauigkeit der ISV-Daten im Vergleich zu den Messungen von Bonn et al. /12/ im 253.7 nm-Übergang.

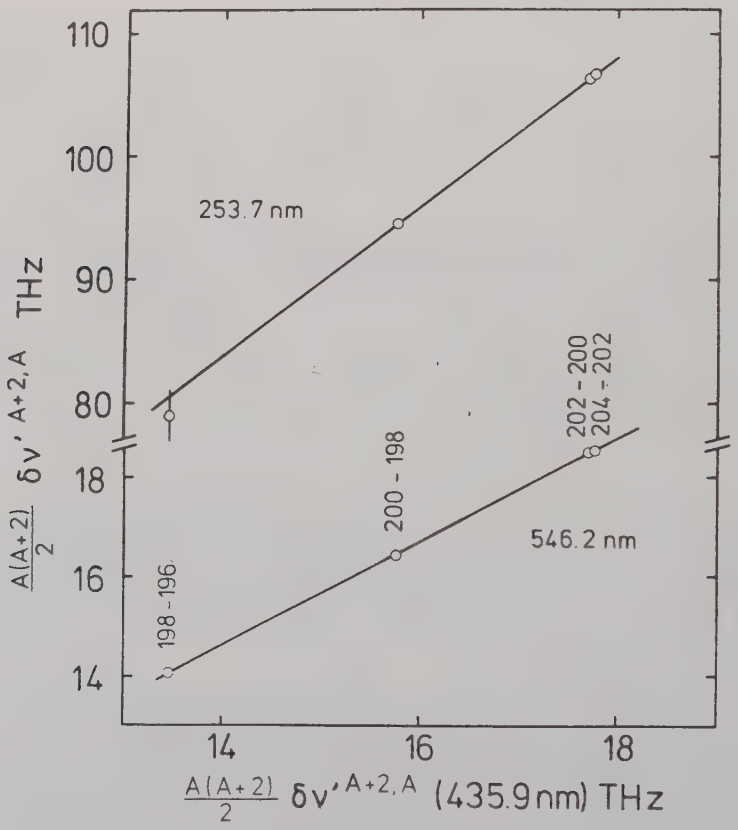

Abb. 22 King-Plot optischer Hg-ISV-Daten

Für die Auswertung und Diskussion der Hg-ISV wird auf die Kapitel 8.2 und 10.5.2 verwiesen.

REFERENZEN

/1/ D.H. Stedman, D.W. Setser: Chemical Applications of Metastable Rare Gas Atoms, Vol. **6**, 193 (Pergamon Press Ltd. 1971)

/2/ L. Allen, D.G.C. Jones, D.G. Schofield: J.Opt.Soc.Am.**59** 842 (1969)

/3/ E. Matthias, R.A. Rosenberg, E.D. Poliakoff, M.G. White S.T. Lee, D.A. Shirley: Chem. Phys.Lett. **52**, 239 (1977)

/4/ D.A. Jackson, M.C. Coulombe: Proc.R.Soc.Lond. **A 338**, 277 (1974)

/5/ W.L. Faust, M.N. McDermott: Phys. Rev. **123**, 198 (1961)

/6/ H. Hühnermann, H. Valentin, H. Wagner: Z. Physik **A 285**, 229 (1978)

/7/ N. Sadeghi, J. Sabbagh, J.C. Pebay-Peyroula: 8th EGAS, Oxford (1976)

/8/ H. Griem: Spectral line broadening by plasmas, (Academic Press, New York, 1964)

/9/ W. Fischer, H. Hühnermann, G. Krömer, H.J. Schäfer: Z. Physik **270**, 113 (1974)

/10/ G. Borghs, P. De Bisshop, R.E. Silverans, M. van Hove, J.M. van den Cruyse: Z. Physik **A 299**, 11 (1981)

/11/ R. Vetter: Phys. Lett. **42 A**, 231 (1972)

/12/ J. Bonn, G. Huber, H.J. Kluge, E.W. Otten: Z. Physik **A 276**, 203 (1976)

7. BESTIMMUNG DES SPEZIFISCHEN MASSENEFFEKTS (SME)

7.1 ISV IN μ-MESONISCHEN ATOMEN

7.2 ISV IN K_α-RÖNTGENÜBERGÄNGEN

7.3 $\delta\langle r^2\rangle$ AUS ELEKTRONENSTREUEXPERIMENTEN AM ATOMKERN

7.4 SYSTEMATIK DER KERNRADIEN NACH ANGELI

7.5 PARAMETRISCHE UNTERSUCHUNGEN DER ISV IN EDELGASÜBERGÄNGEN

7.6 SME-SYSTEMATIK VERGLEICHBARER OPTISCHER ÜBERGÄNGE CHEMISCHER HOMOLOGE

7.6.1 Krypton

7.6.2 Argon

7.6.3 Xenon

7.7 BESTIMMUNG DES SME ÜBER EINEN ISOTONISCHEN PLOT

7.7.1 SME(Ba) über King-Plot μ-mesonischer und optischer ISV-Daten

7.7.2 Relativistische Hartree-Fock-Berechnungen

7.7.3 SME(Ba) nach Fischer et al.

7.7.4 SME(Ba) nach Angeli

7.7.5 SME(Ba) nach Grundevik et al.

7.7.6 Zusammenfassung und Diskussion der SME-Werte für den Ba-Übergang bei 553 nm

7.8 SEPARATION DER ISV MIT HILFE DER BINDUNGSENERGIE PRO NUKLEON

7.9 ZUSAMMENFASSUNG DER XE-SME-WERTE

7. BESTIMMUNG DES SPEZIFISCHEN MASSENEFFEKTS (SME)

Sieht man einmal von extrem leichten und extrem schweren Atomkernen ab, so stellt in fast allen Fällen die Bestimmung des SME oder die Separation des VE von der gemessenen Isotopieverschiebung (ISV) das Hauptproblem dar. Trotz vielfältiger Versuche ist es bis heute nicht gelungen, den SME beliebiger optischer Übergänge verläßlich zu berechnen.

Auch das Element Xenon, bei dem der VE in den hier untersuchten 6s⟶7p-Übergängen schon eine dominante Rolle spielt (IS'/NME = konstant), bereitet in dieser Hinsicht Schwierigkeiten. Daher können aus den vorliegenden sehr genauen Xenon-ISV-Daten nicht entsprechend genaue Kernladungsradiusänderungen $\delta \langle r^2 \rangle$ abgeleitet werden.

Es muß an dieser Stelle darauf hingewiesen werden, daß für die Bestimmung von $\delta \langle r^2 \rangle$ weitere in ihrer Berechnung ebenfalls problematische Größen wie E_i, $f(Z)$ und $\Delta |\Psi(0)|^2$ eingehen (vgl. Kapitel 3 und Kapitel 8).

Ziel dieses Kapitels ist es, verschiedene empirische Methoden zur Bestimmung des SME und damit zur Separation der verschiedenen ISV-Anteile darzustellen und deren Brauchbarkeit am Beispiel der Xenonisotope zu überprüfen.

Neben den bekannten Methoden /1/ wie

- King-Plot mit μ-mesonischen ISV-Daten
- King-Plot mit K_α-Röntgen ISV-Daten
- Vergleich mit $\delta \langle r^2 \rangle$ aus elastischer Elektronenstreuung am Kern
- SME nach dem Gerstenkorn-Bindungsenergie-Modell
- Parametrische Untersuchung des SME nach Stone

sollen auch neuere Methoden zur SME-Bestimmung wie

- Kernradiussystematik nach Angeli /2/
- Isotonischer Plot /3/
- SME-Systematik in chemischen Homologen
- SME aus einem erweiterten Bindungsenergie-Modell /4/

diskutiert und auf die Xenonisotope angewandt werden. Im Rahmen dieser Arbeiten bilden die drei letztgenannten Methoden den Schwerpunkt dieses Kapitels.

In der SME-Systematik chemischer Homologe wird der Versuch unternommen, in vergleichbaren optischen Übergängen Gemeinsamkeiten des SME/NME-Verhältnisses aufzuzeigen. Innerhalb der Edelgasreihe Argon, Krypton und Xenon soll dann von den bekannten Verhältnissen der Argon- und Kryptonübergänge auf den SME/NME-Wert für Xenon geschlossen werden. Dieser Ansatz ließe sich aufgrund neuerer, genauer ISV-Daten ebenfalls auf die Alkali- und Erdalkalielemente übertragen. Dies ist jedoch im Rahmen dieser Arbeit nicht vorgesehen.

7.1 ISOTOPIEVERSCHIEBUNG IN μ-MESONISCHEN ATOMEN

Der Vergleich von optischen ISV mit solchen aus μ-mesonischen Atomen über einen King-Plot gilt als die verläßlichste Methode zur Separation des VE. Diese Methode wird daher in allen Fällen angewandt, in denen μ-mesonische ISV-Daten zur Verfügung stehen.

Bei ISV-Messungen in μ-mesonischen Atomen wird vorwiegend die Energie der Röntgenstrahlung gemessen, die ein μ-Meson bei einem Übergang vom Typ $2p_i \rightarrow 1s_k$ aussendet.

Die Wechselwirkung des μ-Mesons mit der Elektronenhülle des Atoms ist wegen der großen Masse des μ-Mesons ($m_\mu = 207\ m_e$) und der unmittelbaren Aufenthaltswahrscheinlichkeit am Kernort in erster Näherung vernachlässigbar. Das System kann somit quasi als Einelektronenproblem behandelt werden /5/.

Die experimentell bestimmte ISV in einem μ-mesonischen Übergang setzt sich deshalb aus zwei Anteilen zusammen:

$$\delta\nu_\mu^{A,A'} = \nu_\mu^A - \nu_\mu^{A'} = \delta\nu_{NME} + \delta\nu_{VE} \quad (A>A') \quad . \tag{7-1}$$

Trägt man die um den NME bereinigte ISV des μ-mesonischen und des optischen Übergangs in einem King-Plot (vgl. Kapitel 3) auf, so kann aus dem Ordinatenabschnitt der SME des optischen Übergangs bestimmt werden. Messungen der ISV in μ-mesonischen Atomen bleiben jedoch auf stabile Isotope beschränkt, da für die Messungen hoch angereicherte Isotopenproben notwendig sind. Weitere Probleme liegen in der Meßgenauigkeit der Übergangsenergie sowie, insbesondere für schwere Atome, der Berücksichtigung höherer Kernmomente.
Diese vielschichtigen Probleme sind der Grund dafür, daß für viele Elemente keine μ-mesonischen ISV-Daten existieren. Dazu gehört auch das Element Xenon, wobei hier wie bei allen Gasen große Intensitätsprobleme existieren. Gekühlte, feste Xe-Gas-Targets wären sehr aufwendig und sind bisher nicht für solche Untersuchungen verwendet worden.

7.2 ISOTOPIEVERSCHIEBUNG IN K_α - RÖNTGENÜBERGÄNGEN

ISV in K_α - Röntgenübergängen beinhalten wegen der relativ großen Überlappung der 1s-Elektronen mit dem Kern einen großen Volumeneffekt. Im Gegensatz zu ISV-Daten μ-mesonischer Über-

gänge läßt sich die K_α-Strahlung nicht sehr genau messen. Für Separationen optischer ISV wären präzisere K_α-ISV-Daten allerdings sehr wünschenswert. Trotz der noch größeren Ungenauigkeiten, die im wesentlichen durch das Energieauflösungsvermögen der Röntgendetektoren bedingt sind, können die existierenden Daten ebenfalls zur Separation optischer ISV-Daten herangezogen werden. Im Gegensatz zu den Verhältnissen in optischen Übergängen sind die Masseneffekte (NME + SME) in K_α-Übergängen klein und zudem verläßlich berechenbar /6/.

Für die Xenonisotope ^{127,129,131,132}Xe existiert eine Untersuchung an der K_α-Linie. Sie ist jedoch nicht für eine Separation der optischen ISV-Daten geeignet, da aufgrund des Xe-Herstellungsprozesses (Cs⟶Xe) nur $\delta\langle r^2\rangle$ zwischen Xe-Isotopen in verschiedenen angeregten Kernzuständen bestimmt werden konnte, die optischen Daten sich jedoch ausschließlich auf den Kerngrundzustand beziehen /7/.

7.3 $\delta\langle r^2\rangle$ AUS ELEKTRONENSTREUEXPERIMENTEN AM ATOMKERN

Mit Hilfe der elastischen Streuung von Elektronen am Kern ist es möglich, direkte Aussagen über Kernradien zu machen /8/. Ist aus Elektronenstreumessungen $\delta\langle r^2\rangle$ zum Beispiel für zwei Isotopenpaare bekannt, so läßt sich in guter Näherung sowohl der elektronische Faktor E_i als auch der SME in der ISV eines optischen Übergangs i berechnen. Es gelten die folgenden Bestimmungsgleichungen:

$$IS_i'^{A,A'} = E_i\,\delta\langle r^2\rangle^{A,A'} + \delta\nu_i^{A,A'}(SME) \qquad (7\text{-}2)$$

$$(A > A')$$

$$IS_i^{A'A''} = E_i\,\delta\langle r^2\rangle^{A'A''} + \frac{A'\cdot A''}{A\cdot A'}\,\delta\nu_i^{A,A'}\,(SME) \qquad (A>A'>A'') \qquad (7\text{-}3)$$

Dieses Verfahren ist wegen der im allgemeinen recht großen Fehler der $\delta\langle r^2\rangle$ ungenau und führt zu großen Fehlern für die gesuchten Größen E_i und $\delta\nu_i(SME)$.
Leider gibt es für die Xenonisotope keine aus Elektronenstreumessungen bestimmte $\delta\langle r^2\rangle$ -Werte.

7.4 SYSTEMATIK DER KERNRADIEN NACH ANGELI

Bevor wir auf den Beitrag des Angeli-Verfahrens /2/ für die Bestimmung des SME näher eingehen, soll das Verfahren selbst kurz beschrieben werden.

Ausgangspunkt für die von Angeli aufgestellte Systematik der Kernradien war die Suche nach Unregelmäßigkeiten in der Neutronenzahlabhängigkeit der mittleren quadratischen (rms) Kernladungsradien. Diese Unstetigkeiten deuten auf Haupt- und Unterschalenabschlüsse in den Kernen hin.

Angeli geht wie folgt vor:

Zunächst wird für alle Isotope eines Elements das Verhältnis

$$\varrho(N) = \frac{\langle r^2\rangle_{EXP}^{1/2}}{\langle r^2\rangle_{ELTON}} \qquad (7\text{-}4)$$

gebildet. Für die Normierung der experimentellen Kernladungsradien werden nach dem Elton-Modell /9/ berechnete Kernradien verwendet. Im Rahmen der experimentellen

Fehler stellt Angeli eine Abhängigkeit der Größe $\varphi(N)$ von der Neutronenzahl N fest. Die Steigung dieser linearen Funktion bezeichnet er mit a_z.
Ausgehend von einem bekannten Kernradius gestattet a_z die Berechnung eines beliebigen Kernradius einer Isotopenreihe.

Die absoluten Werte der Größe a_z nehmen zu schwereren Elementen hin ab. Um die gesuchten Schaleneffekte auch bei hohen Massenzahlen noch sicher erkennen zu können, multipliziert Angeli a_z mit dem mittleren Atomgewicht $\bar{A}$ des jeweiligen Elements. In Abb. 1 ist die Größe $a_z\bar{A}_z$ als Funktion der Kernladungszahl Z aufgetragen.

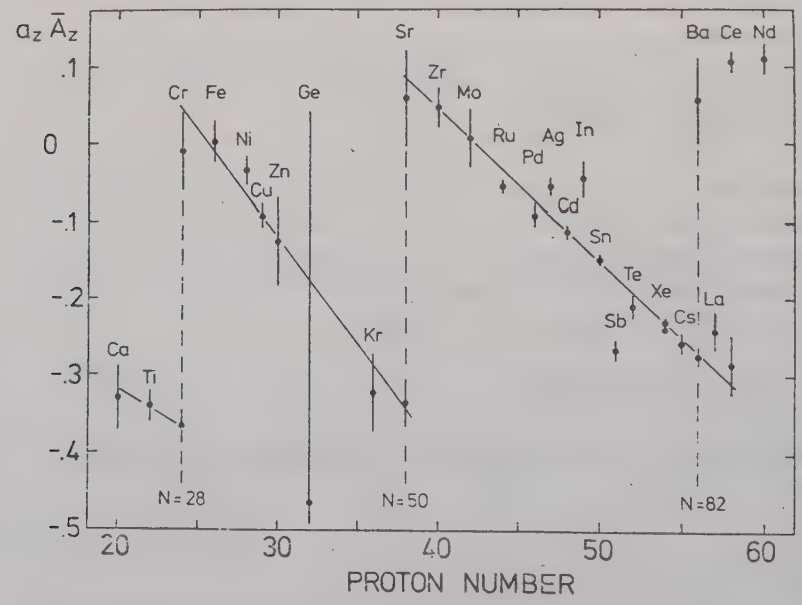

Abb. 1 $a_z\bar{A}_z$ als Funktion der Kernladungszahl. Unstetigkeiten im Kurvenverlauf werden von Kernschalenabschlüssen verursacht.

Was nützt nun das Verfahren von Angeli für die Bestimmung von SME im allgemeinen und für Xenon im besonderen?

In Abb. 2 ist der für Xenon relevante Ausschnitt aus dem Angeli-Plot vergrößert dargestellt. Die Gerade wird, abweichend von Angeli, nur durch die Elemente Sr, Cd, Sn und Ce festgelegt.

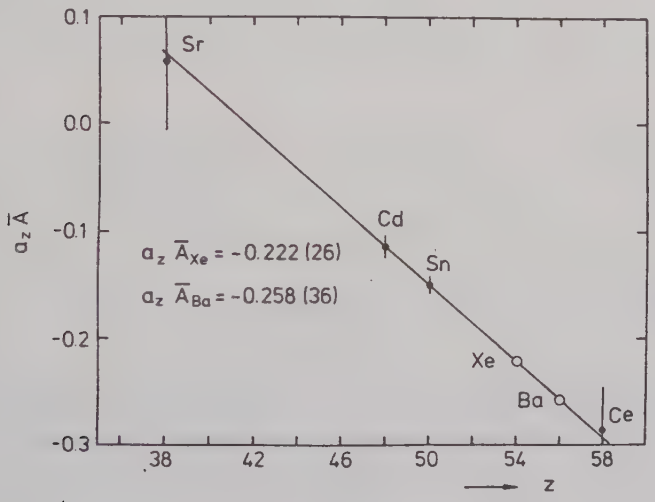

Abb. 2 Ausschnitt aus dem $a_z\bar{A}_z$-Diagramm im Bereich der mittelschweren Elemente

Die Kernradien dieser Elemente wurden ausschließlich aus μ-mesonischen ISV-Daten abgeleitet. Interpoliert man nun auf dieser Geraden bei Z = 54 (Xenon), so erhält man den folgenden Wert:

$$a_Z\bar{A}_{Xe} = -0.22(3) \quad .$$

Die Gültigkeit der Angeli-Systematik vorausgesetzt, beinhaltet der interpolierte Wert $a_Z\overline{A}_{Xe}$ die Kernladungsradiusänderungen der Xenonisotope als Funktion der Neutronenzahl N (vgl. Gl. 7-4).

Mit dem obigen Wert kann man zunächst $\delta\langle r^2\rangle^{136,124}$ für Xenon berechnen. Der Ausgangswert $\langle r^2\rangle^{136}$ wird nach der Elton-Formel /9/ berechnet. Mit Hilfe des $E_{467\ nm}$-Faktors (vgl. Kapitel 8) läßt sich dann der VE im 467 nm-Übergang berechnen. Den SME für diesen Übergang bezogen auf das Isotopenpaar ^{136,124}Xe erhält man dann aus der Beziehung:

$$SME^{136,124}_{ANGELI} = IS'^{136,124}_{EXP} - VE^{136,124}_{ANGELI} .$$

Auf das Isotopenpaar ^{136,134}Xe umgerechnet, erhält man schließlich:

$$SME(^{136,134}Xe) = -23(35)\ MHz.$$

Für einen späteren Vergleich der SME-Werte von Xenon und Barium wurde analog zum Rechengang für Xenon mittels ISV-Daten von Nowicki et al. /10/ und einem gemittelten E_i-Faktor (nach Baird /11/ und Nowicki) für das Paar ^{138,136}Ba in der Ba-Resonanzlinie bei 553 nm der folgende Wert ermittelt:

$$SME(^{138,136}Ba) = +58(96)\ MHz.$$

Sieht man einmal von der Problematik der theoretischen Begründung der Angeli-Systematik ab, so können an dieser Stelle zwei Aussagen gemacht werden:

1. Der SME im 467 nm-Übergang ist negativ. Dieses Ergebnis ist konsistent mit dem Ergebnis der parametrischen ISV-Untersuchung nach Stone /12/ (vgl. Kapitel 7.5).

2. Der SME in der 553 nm Ba-Resonanzlinie ist positiv. Dieser Wert liegt wie der aus alten μ-mesonischen Ba-ISV-Daten bestimmte SME /11/ weit außerhalb der sogenannten Heilig/Steudel-Abschätzung /1/ (vgl. Kapitel 3.4.2), die einen Wert von 0(15) MHz vorhersagt. Beide SME-Werte sind jedoch im Widerspruch zu dem SME-Wert, der sich aus neueren μ-mesonischen Ba-Daten ergibt /13/.

Innerhalb der Fehlergrenzen sind die nach dem Angeli-Verfahren abgeleiteten SME-Werte für Barium und Xenon mit den aus Isotonischen Plots abgeleiteten Werten verträglich.

7.5 PARAMETRISCHE UNTERSUCHUNG DER ISV IN EDELGASÜBERGÄNGEN

Die allgemeinen Prinzipien dieser Methode und die Ergebnisse einer ersten Anwendung auf die Edelgase Ne, Ar, Kr und Xe wurden erstmals von Stone /12/ dargestellt. Seine Methode beruht auf einem zweistufigen Prozeß:

1. In einer parametrischen Untersuchung der Energieniveaus werden die Winkelanteile der Wellenfunktionen der Niveaus bestimmt. Mit diesen Wellenfunktionen läßt sich die Energieverschiebung eines jeden Niveaus von Isotop zu Isotop durch sogenannte ISV-Parameter beschreiben.

2. In einem Fit-Verfahren werden die numerischen Werte dieser Parameter derart variiert, daß die experimentelle ISV am besten reproduziert werden kann.

Im Zusammenhang mit der in diesem Kapitel behandelten Problematik der Separation der verschiedenen ISV-Anteile ist es interessant, die von Stone aufgrund seiner parametrischen Analyse berechneten ISV-Daten mit den in dieser Arbeit gemessenen ISV für Ar, Kr und Xe zu vergleichen. Die folgende Tabelle 1 zeigt eine Zusammenstellung der relevanten Größen:

Isotopenpaar/ Übergang	IS'_{exp} (1981) (MHz)	IS'(Stone/1959) (MHz)
$^{38,36}Ar$	- 75.7(7)	- 63
$^{40,36}Ar$	-154.0(4)	-120
$4s\|3/2\|_2 \rightarrow 5p\|5/2\|_3$ (420 nm)		
$^{86,84}Kr$	+ 10.2(4)	+ 12.9
$^{84,82}Kr$	+ 3.8(4)	+ 8.4
$5s\|3/2\|_2 \rightarrow 6s\|5/2\|_3$ (432 nm)		
$^{136,134}Xe$	-118.5(6)	-132
$^{134,132}Xe$	- 76.0(3)	- 90
$6s\|3/2\|_2 \rightarrow 7p\|5/2\|_3$ (467 nm)		

Tab. 1 Vergleich der mit diesem Spektrometer ermittelten Ar-, Kr- und Xe-ISV-Daten mit den von Stone mittels einer parametrischen Methode berechneten ISV

In Anbetracht der Genauigkeit der ISV-Daten, die Stone für seine parametrische Anpaßung zur Verfügung standen, ist die Übereinstimmung seiner ermittelten IS'-Werte mit unseren experimentell ermittelten IS'-Werten bemerkenswert gut. Die Abweichungen seiner Rechnungen von unseren Messungen betragen maximal 25 % (Ausnahme: ^{84,82}Kr: 120 %).

Jackson /14/ verwendete 1974 die mittlerweile größere Anzahl genauerer ISV-Daten für eine zweite, weitergehende parametrische Untersuchung der Xenonisotope. Gegenüber der Arbeit von Stone wurden jetzt alle stabilen Xenonisotope miteinbezogen. Neben den ISV-Daten der 6s- und 6p-Konfiguration wurden erstmals auch die 5d- und 7p-Konfigurationen berücksichtigt.

Als Ergebnis seiner Untersuchungen gibt Jackson IS'-Werte für jedes untersuchte Xenonniveau an (vgl. Tab. 1 in /14/). Der in der vorliegenden Arbeit untersuchte 467 nm-Übergang beinhaltet nach seiner Tabelle einen SME von:

$$\mathrm{SME}\ (^{136,134}\mathrm{Xe}) \quad = \quad -\ 9(6)\ \mathrm{MHz}.$$

Inwieweit noch präzisere ISV-Daten zu einer weiteren Einengung des SME-Fehlers beitragen könnten, ist nicht geklärt. Die hier vorgestellten ISV-Daten und vor allem die Meßmethode könnten jedoch der Ausgangspunkt für eine hinsichtlich der Genauigkeit und der Anzahl der Isotope verbesserten parametrischen Untersuchung der ISV in Xenonübergängen sein.

7.6 SME-SYSTEMATIK VERGLEICHBARER OPTISCHER ÜBERGÄNGE CHEMISCHER HOMOLOGE

Sehr genaue ISV-Messungen wurden neben Xenon auch an den Edelgasen Argon und Krypton durchgeführt. Folgende Übergänge wurden dabei untersucht:

$4s|3/2|_2 \longrightarrow 5p|5/2|_3$ $\quad Ar_{420\ nm}$

$5s|3/2|_2 \longrightarrow 6p|5/2|_3$ $\quad Kr_{432\ nm}$

$6s|3/2|_2 \longrightarrow 7p|5/2|_3$ $\quad Xe_{467\ nm}$.

Dieser Übergangstyp ist wegen des großen Beitrags der s-Elektronen zum VE für die Bestimmung von Kernladungsradien besonders geeignet. Außerdem sollte nach der Heilig/Steudel-Abschätzung der SME in solchen Übergängen vermutlich klein sein (vgl. Kapitel 3.4.2).
Es wird im folgenden versucht, für diesen Übergangstyp eine Systematik des SME aufzuzeigen. Um den Einfluß der Wellenlänge auf den SME zu eliminieren, wird das Verhältnis SME/NME betrachtet.

7.6.1 Krypton

Für Krypton und in noch stärkenem Maße für Argon ist der Einfluß des VE auf die ISV klein. Beim Krypton war vor Beginn der Untersuchungen der Verlauf der Kernladungsradiusänderungen mit steigender Neutronenzahl unbekannt. In diesem Falle brachte erst die Untersuchung von Gerhardt et al. /15/ Klarheit in die Interpretation der optischen ISV-Daten. Diese Vorstellungen wurden im nachhinein auch durch μ-mesonische ISV-Daten bestätigt /16/.

Für das Isotopenpaar $^{86,84}Kr$ erhält man über einen King-Plot mit den ISV-Daten des 432 nm-Übergangs folgenden SME:

$$SME(^{86,84}Kr) = -6(10)\ MHz.$$

Um die SME der verschiedenen Übergänge und Elemente miteinander vergleichen zu können, ist eine Normierung der SME-Daten auf den normalen Masseneffekt (NME) notwendig. Für den 432 nm-Kr-Übergang erhält man:

$$SME/NME\ (^{86,84}Kr) = -5(10)\ \% \quad .$$

7.6.2 Argon

Argon besitzt drei stabile Isotope mit stark unterschiedlichen natürlichen Häufigkeiten. Die ISV dieser Isotope wurde im 4s→5p Übergang bei 420 nm im natürlichen Isotopengemisch mit hoher ($\Delta\nu < 1$ MHz) Frequenzgenauigkeit bestimmt. Folgende Werte wurden gemessen:

$$\delta\nu_{EXP}^{40,38} = \nu(^{40}Ar) - \nu(^{38}Ar) = 433.4(4)\ MHz$$

$$\delta\nu_{EXP}^{38,36} = \nu(^{38}Ar) - \nu(^{36}Ar) = 492.6(7)\ MHz.$$

Der übliche Weg, eine Separation des SME-Anteils an der ISV über einen King-Plot mit μ-mesonischen ISV-Daten durchzuführen, scheitert an der Ungenauigkeit der zur Verfügung stehenden μ-mesonischen Daten /18/. Aus denselben Gründen ist eine Separation über Elektronenstreudaten ebenfalls nicht durchführbar /19/.

Im Falle der Argonisotope führt ein anderer, jedoch nicht allgemein anwendbarer Weg zu einer Abschätzung des SME. Folgende Fakten sind bekannt:

1. Die um den NME reduzierten ISV sind für beide Paare negativ:

$$IS'(^{40,38}Ar) = \delta\nu_{EXP}^{40,38} - \delta\nu_{NME}^{40,38} = -78.0(4)\ \text{MHz}$$

$$IS'(^{38,36}Ar) = \delta\nu_{EXP}^{38,36} - \delta\nu_{NME}^{38,36} = -75.7(7)\ \text{MHz}\ .$$

2. Aus μ-Mesonen- und Elektronenstreumessungen /19/ weiß man, daß der Kernladungsradius zwischen ^{36}Ar und ^{40}Ar zunimmt, $\delta\langle r^2\rangle^{A,A'}$ also positiv ist. Der E_i-Faktor für den untersuchten Ar-Übergang ist ebenso wie die vergleichbaren E_i-Faktoren der Kr- und Xe-Übergänge negativ. Daher muß der VE für die hier untersuchten Ar-Paare ebenfalls negativ sein.

Unter der für diesen Massenbereich vernünftigen Annahme, daß $|VE| \leq |IS'|$ ist, folgt aus 1. und 2., daß der SME ebenfalls negativ sein muß. Damit und mit einer weiteren Annahme soll im folgenden ein numerischer Wert für den Ar-SME abgeleitet und mit ihm das SME/NME-Verhältnis berechnet werden.

Insbesondere für das erste Isotopenpaar oberhalb abgeschlossener Kernschalen beobachtet man große Kernladungsradiusänderungen, d.h. große $|VE|$ im Vergleich zu den Verhältnissen beim letzten Isotopenpaar einer abgeschlossenen Kernschale.

$^{40,38}Ar$ ist ein solches Paar. Geht man davon aus, daß man $\delta\langle r^2\rangle^{38,36}$ gegenüber $\delta\langle r^2\rangle^{40,38}$ vernachlässigen kann, also

$VE(^{38,36}Ar) \approx 0$ ist, so wird $SME(^{38,36}Ar) = -75.7$ MHz. Durch die Massenabhängigkeit des SME wird $SME(^{40,38}Ar) = -68$ MHz und in der Folge davon $VE(^{40,38}Ar) = -10$ MHz.

Normiert auf den NME erhält man:

$$SME/NME(^{38,36}Ar) = -12(1)\ \% \quad .$$

7.6.3 Xenon

Im Rahmen der Fehlergrenzen stimmen die für Argon und Krypton ermittelten SME/NME-Verhältnisse für die $1s_5 \longrightarrow 3p_8$-Übergänge gut überein. Für den entsprechenden Xenonübergang postulieren wir daher den Mittelwert für SME/NME aus Ar und KR von:

$$SME/NME(Xe) = -8(10)\ \% \quad .$$

Für den 467 nm Übergang bedeutet dies:

$$SME(^{136,134}Xe) = -4(4)\ \text{MHz}.$$

7.7 BESTIMMUNG DES SME ÜBER EINEN ISOTONISCHEN PLOT

In einem Isotonischen Plot werden ähnlich wie beim King-Plot (vgl. Kapitel 3.4.4) die ISV "entsprechender" Nuklidpaare in zwei verschiedenen optischen Übergängen miteinander verglichen /3,20/. Die Isotopenpaare der Elemente A und B müssen lediglich die gleiche Anzahl von Neutronen haben (Isotone). Die Idee des Isotonischen Plots besteht darin, vorhandene SME-Informationen eines Elementes A zur Bestimmung des SME des Elementes B zu verwenden, wobei angenommen wird, daß die Kernladungsradiusänderungen beider Elemente ähnlich verlaufen.

Ist in der isotonischen ISV-Darstellung ein linearer Zusammenhang zwischen der ISV der isotonen Paare zweier Elemente A und B feststellbar, dann wird dies durch folgende Beziehung beschrieben:

$$\delta\nu_A' = \frac{E_A}{c \cdot E_B}\,\delta\nu_B' + \left\{ SME(A) - \frac{E_A}{c \cdot E_B} \cdot SME(B) \right\} \qquad (7\text{-}5)$$

Aus dem Achsenabschnitt von Gl. 7-5 kann der SME eines der beiden Elemente berechnet werden. Voraussetzung hierfür ist jedoch, daß einer der beiden SME bereits bekannt ist. Die Kombination Xe-Ba ist zur exemplarischen Überprüfung dieser Beziehung geeignet, da im Gegensatz zu Xenon die SME-Werte für Ba bekannt sind.

Ein linearer Zusammenhang wurde zuerst von Fischer et al. für diese Elementekombination beobachtet /3/. Eine allgemeine Überprüfung der Gültigkeit des Isotonischen Plots gestaltet sich sehr schwierig, da es nur wenige geeignete Elemente gibt, für die genaue ISV-Daten über einen großen Massenbereich vorhanden sind.

In der vorliegenden Arbeit konnten nun einerseits sehr viel genauere Xe-ISV-Daten (Fehler $<$ 500 kHz) für verschiedene Xenonübergänge ermittelt werden. Andererseits konnte auch die Anzahl der untersuchten Isotope erhöht werden. Zusammen mit den ebenfalls sehr genauen Ba-ISV-Daten von Nowicki et al. /10/ stehen für die isotonische ISV-Darstellung jetzt neun Paare zur Verfügung.

Abb. 3 zeigt den mit diesen ISV-Daten erstellten Isotonischen Plot. Im Rahmen der Meßfehler liegt die Mehrzahl der Punkte exakt auf einer Geraden, während bei drei Punkten Abweichungen

auftreten, die größer sind als die Fehler der ISV-Daten. Besonders auffallend ist die Abweichung für den Punkt mit den Neutronenzahlen N = 77,79. Unterschiedliche Kerndeformationseinflüsse auf die Kernladungsradiusänderungen in den beiden Elementen könnten eine Ursache dafür sein (vgl. Kapitel 10).

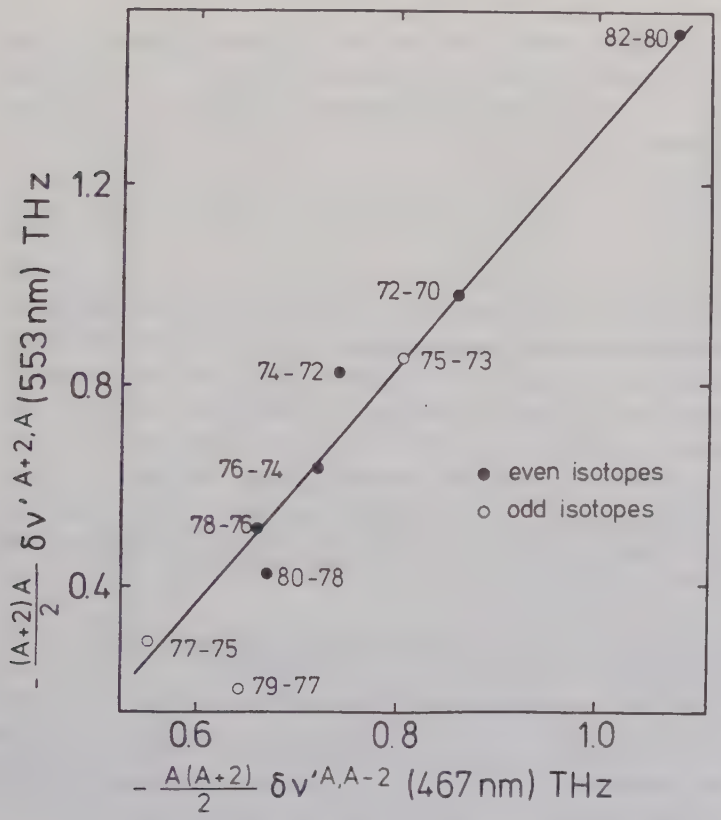

Abb. 3 Isotonischer Plot mit Ba- und Xe-ISV-Daten

Die in der Literatur existierenden Deformationswerte für Xenon und Barium sind leider mit großen Fehlern behaftet, so daß im Rahmen der Fehlergrenzen der Isotonische Plot seine Gültigkeit behält.
Die absoluten Abweichungen der Punkte in Abb. 3 von der eingezeichneten Ausgleichsgeraden liegen im Bereich von 3 bis 5 MHz, treten also erst bei den jetzt vorliegenden genauen ISV-Messungen in Erscheinung.

Als numerische Werte erhält man aus Abb. 3 eine Steigung von m = 2.5(1) und einen Achsenabschnitt von $10(1)*10^{11}$ Hz. Dies ergibt nach Gl. 7-5 folgende Beziehung zwischen den SME von Xenon und Barium:

$$SME(^{136,134}Xe) = 0.4 \left[SME(^{138,136}Ba) - 110(10) \text{ MHz} \right] . \quad (7\text{-}6)$$

Ausschlaggebend bei der Festlegung des SME für den Xe-Übergang bei 467 nm mittels eines Isotonischen Plots ist natürlich die genaue Kenntnis des SME im Ba-Übergang bei 553 nm. Leider existieren zum Teil widersprüchliche Ba-SME-Werte. Zur Klärung dieser Situation werden in den folgenden Abschnitten die verschiedenen Möglichkeiten der SME-Bestimmung für den 553 nm-Übergang diskutiert und zusammengefaßt. Der daraus hervorgehende wahrscheinlichste Wert soll dann zur Berechnung des Xe-SME verwendet werden.

7.7.1 SME(Ba) über King-Plot μ-mesonischer und optischer ISV-Daten

Die SME-Festlegung ist nicht ohne Problematik, obwohl es für die stabilen Ba-Isotope $^{138,137,136}Ba$ sowohl μ-mesonische /21/ als auch K_α-ISV-Daten /22/ gibt. Die Schwierigkeit liegt in den teilweise widersprüchlichen Werten der ermittelten r^2,

insbesondere im Vergleich zu $\delta\langle r^2\rangle$ -Werten optischer ISV-Messungen.

Zur Illustration dieses Sachverhaltes sind in der folgenden Tabelle 2 die Kernladungsradiusänderungen der häufigsten stabilen Ba-Isotope zusammengestellt.

Barium Paare	/21/ μ-mesonisch	$\delta\langle r^2\rangle$ (fm²) /22/ K_α	/23/ optisch
138,136	0.062(5)	0.057(13)	0.045(10)
136,134		-0.022(15)	0.016(9)
135,134		-0.040(13)	-0.022(10)
137,136	0.002(12)	-0.001(13)	-0.020(6)

Tab. 2 Zusammenstellung der quadratischen Kernladungsradius-änderungen $\delta\langle r^2\rangle$ stabiler Bariumisotope

In der Arbeit von Baird et al. /11/ wird die daraus resultierende Problematik des SME der Bariumisotope eingehend diskutiert. Die Autoren geben letztlich den alten μ-mesonischen Daten den Vorzug. Für die Ba-Resonanzlinie bei 553 nm erhalten sie:

$$SME(^{138,136}Ba) = +83 \text{ MHz}.$$

Neue und wesentlich genauere μ-mesonische Ba-ISV-Daten wurden kürzlich veröffentlicht /13/. Über einen King-Plot mit optischen ISV-Daten ermitteln die für den 553 nm-Übergang einen SME von:

$$SME(^{138,136}Ba) = -26(11)\ MHz.$$

Dieser Wert steht im krassen Gegensatz zu dem aus den alten μ-mesonischen Messungen ermittelten SME-Wert, muß jedoch wegen der bis zu vierfach höheren Genauigkeit der Daten als der derzeitige Bestwert angesehen werden.

7.7.2 Relativistische Hartree-Fock-Berechnungen

Solche Rechnungen wurden von Wilson /24/ für den SME von p→d-Übergängen im Ba-Ion unternommen. Er berechnet für den 6p→5d-Übergang bei 585 nm einen SME von - 144 MHz pro Isotopenpaar. Bildet man einen King-Plot mit ISV-Daten des Ba-Übergangs bei 553 nm und des Ba-Ionen-Übergangs bei 585 nm, so kann man die SME-Rechnungen von Wilson in die Ba-Resonanzlinie "transformieren".

Abb. 4 zeigt einen entsprechenden King-Plot mit BaII-Daten von Silverans /25/ und BaI-Daten von Nowicki /10/. Mit dem von Wilson errechneten SME von - 144 MHz für den BaII-Übergang bei 585 nm erhält man aus dem King-Plot einen Achsenabschnitt von - 170(10) MHz und eine Steigung m = - 0.35(9). Gemäß Gl. 3-43 (vgl. Kapitel 3) erhält man für die Ba-Resonanzlinie:

$$SME(^{138,136}Ba) = -75(10)\ MHz.$$

Der angegebene Fehler berücksichtigt lediglich Fehler der ISV-Daten.

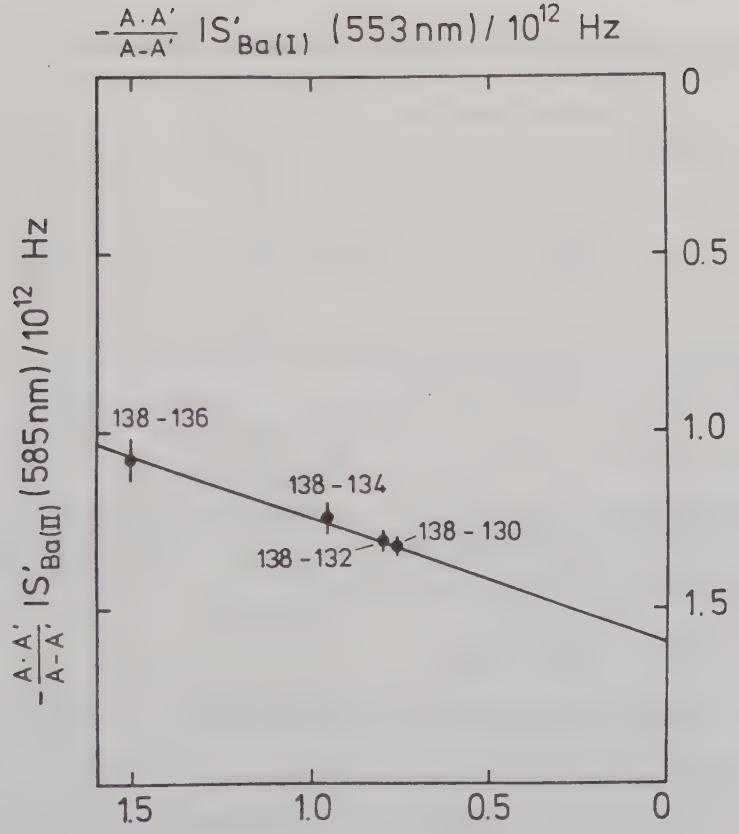

Abb. 4 King-Plot zur Bestimmung des SME in der 553 nm-Ba-Resonanzlinie

7.7.3 Ba-SME nach Fischer et al. /23/

Fischer et al. setzen den SME in dem von ihnen untersuchten Übergang (BaII, 493 nm) mehr oder weniger willkürlich null. Die Autoren begründen diesen Wert wie folgt:

1. Rechnungen von Bauche liefern für den SME: - 45 MHz

2 Vergleiche μ-mesonischer und optischer ISV-Daten liefern: + 60 MHz.

Als Quasimittelwert setzen sie ein:

SME(BaII, 493 nm) ≙ 0 MHz.

Mit diesem Wert erhält man über einen King-Plot für den SME im 553 nm-Übergang:

SME(BaI, 553 nm) = + 12 MHz.

Anhand der angegebenen Referenzen ist nicht feststellbar, ob die identischen Resultate von 7.7.3 und 7.7.4 aufgrund der gleichen Voraussetzungen entstanden sind.

7.7.4 Ba-SME nach Angeli /2/

Dieses Verfahren liefert für den 553 nm-Übergang (vgl. Kapitel 7.4):

SME(BaI, 553 nm) = + 60(100) MHz.

Die sehr großen Fehler schließen eine Anwendung dieses Wertes im Rahmen eines Isotonischen Plots aus.

7.7.5 Ba-SME nach Grundevik et al. /27/

Grundevik et al. erhalten über eine King-Plot-Analyse mehrerer Übergänge des Typs 6s5d⟶6p5d einen Wert für den SME im 553 nm-Übergang von:

SME(BaI, 553 nm) = + 7(17) MHz.

Das verwendete Verfahren beruht jedoch auf den empirischen Abschätzungen von Heilig/Steudel, deren allgemeine Gültigkeit nicht erfüllt ist.

7.7.6 ZUSAMMENFASSUNG UND DISKUSSION DER SME-WERTE FÜR DEN BA-ÜBERGANG BEI 553 NM

Tab. 3 zeigt eine Zusammenstellung aller Werte des SME im 553 nm-Ba-Übergang. Der neue von Shera et al. ermittelte SME-Wert darf als der verläßlichste Wert angesehen werden. Bemerkenswert ist die Übereinstimmung des Vorzeichens mit dem aus der SME-Rechnung von Wilson.

SME(^{138,136}Ba) (MHz)	Autoren Ref.	Methode
+83	Baird et al Ref. /11/	King Plot μ-mesonischer ISV-Daten(Thompson) mit optischen ISV-Daten (Baird)
-26(11)	Shera et al Ref. /13/	King Plot μ-mesonischer ISV-Daten (Shera) mit optischen ISV-Daten (Bekk)
-75(10)	diese Arbeit Ref. /24, 25/	King Plot Ba II mit Ba I ISV-Daten, SME(Ba II) aus relativistischen HF-Rechn.
+12	Fischer et al Ref. /23/	King Plot Ba II mit Ba I ISV-Daten, SME(Ba II) = 0
+60(100)	diese Arbeit	Empirik nach Angeli vgl. Kap. 7.4
+ 7(17)	Grundevik et al Ref. /27/	ISV-Analyse mehrerer Ba I - Übergänge, mit gewonnenem SME King Plot mit 553 nm Übergang

Tab. 3 Zusammenstellung aller bekannten Ba-SME-Werte

Unter Verwendung des Ba-SME von Shera erhält man nach Gl. 7-6, d.h. über einen Isotonischen Plot für Xenon:

$$SME(^{136,134}Xe,\ 467\ nm) \quad = \quad -\ 54(10)\ MHz.$$

7.8 SEPARATION DER ISV MIT HILFE DER BINDUNGSENERGIE PRO NUKLEON

Gerstenkorn /28/ hatte festgestellt, daß zwischen der Differenz der Bindungsenergie pro Nukleon zweier Isotope und der Differenz der Volumeneffekte ($\hat{=}\ \delta \langle r^2 \rangle$) folgender Zusammenhang besteht:

$$\Delta VE = -K_1 \Delta\left(\frac{B}{A}\right) + K_2 \qquad (7\text{-}7)$$

Diese Beziehung ist nach Gerstenkorn nur gültig für Isotopenpaare mit (N,N+2), (N,N-2) und (N-2,N-4), wobei N eine magische Neutronenzahl darstellt.

Wir haben versucht, das Gerstenkorn-Modell zu erweitern. Dabei wurde anhand eigener Kr- und Xe-ISV-Daten sowie mit Ba-ISV-Daten von Nowicki die Relation zwischen Isotopieverschiebung und der Änderung der Bindungsenergie pro Nukleon an allen zur Verfügung stehenden Xe-Ba-Isotopenpaaren untersucht /4/.

Abb. 5 zeigt das Ergebnis dieser Untersuchungen für Xenon und Barium für Neutronenzahlen unterhalb N = 82 .
Man erkennt, daß ein linearer Zusammenhang zwischen IS' und der Differenz der Bindungsenergien pro Nukleon Δ (B/A) insbesondere auch für die Paare (N-4,N-6) usw. besteht.

Im Falle von Barium können auch Paare oberhalb der magischen Neutronenzahl N = 82 in die Betrachtung miteinbezogen werden (in Abb. 5 nicht dargestellt, siehe jedoch Kapitel 10). Das

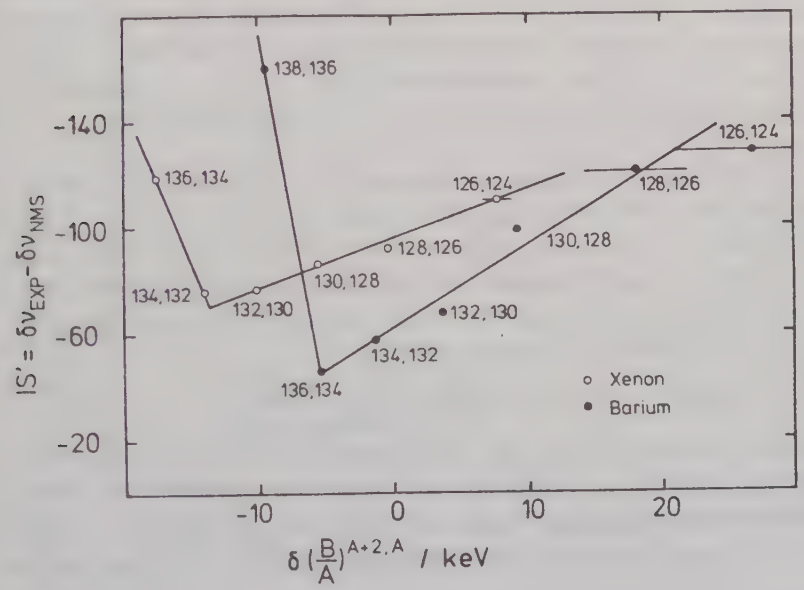

Abb. 5 Zusammenhang zwischen ISV und Änderung der Bindungsenergie pro Nukleon für Xenon und Barium unterhalb einer abgeschlossenen Neutronenschale

Paar ^{140,138}Ba paßt im Rahmen der Meßfehler auf die von den Paaren ^{138,136}Ba und ^{136,134}Ba definierte Gerade. In Erweiterung der Gerstenkornschen Hypothese könnte man daher sagen, daß neben dem Paar oberhalb der magischen Neutronenzahl

auch unterhalb der magischen Neutronenzahl ein in guter Näherung linearer Zusammenhang zwischen IS' und Δ (B/A) für die Xenon- und Bariumisotope besteht.

Abweichend von Gerstenkorn ist in Abb. 5 IS' anstelle von $\delta\langle r^2\rangle$ als Funktion von Δ (B/A) aufgetragen. Dies hat jedoch keinen signifikanten Einfluß auf die Gültigkeit des linearen Zusammenhangs. Da IS' - Daten im allgemeinen einen SME-Beitrag enthalten, führt dies gegebenenfalls zu einer Parallelverschiebung der Kurve von Abb. 5 bezüglich der Δ(B/A)-Achse.

Was kann nun die Hypothese von Wenz et al. /4/ zur Bestimmung des SME im 467 nm-Xe-Übergang beitragen?
Die allgemeine Gültigkeit von Gl. 7-7 vorausgesetzt muß, k_2 bekannt oder vernachlässigbar klein sein. Im allgemeinen ist diese Konstante jedoch unbekannt. Zur Berücksichtigung des SME muß Gl. 7-7 wie folgt verändert werden:

$$\Delta VE + SME = -K_1 \Delta\left(\frac{\beta}{A}\right) + \underbrace{K_2 + SME}_{a} \qquad (7\text{-}8)$$

Mit dieser Gleichung und dem im Kapitel 7.7 festgelegten SME für Barium kann k_2 zunächst für die Ba-Isotope bestimmt werden. Man erhält mit SME (BaI, 553 nm) = - 26 MHz und einem aus Abb. 5 bestimmten Achsenabschnitt $a_{Ba} = (k_2 + SME)_{Ba} = -65$ MHz:

$$k_2(Ba) = - 39 \text{ MHz}.$$

Unter der Annahme, daß sich diese Konstante k_2 für benachbarte Elemente nicht oder zumindest nicht drastisch ändert, kann man jetzt umgekehrt aus dem Achsenabschnitt für die Xenonisotope deren SME im 467 nm-Übergang ableiten. Aus Abb. 5 ergibt sich ein Achsenabschnitt a_{Xe} = - 95 MHz und damit nach Gl. 7-8:

$$SME(^{136,134}Xe) = - 57(11) \text{ MHz}.$$

7.9 ZUSAMMENFASSUNG DER XE-SME-WERTE

METHODE	REF.
Abschätzung für s p Übergänge SME/NME = 0.3 ± 0.9	Heilig-Steudel Kapitel 3.4.2
Systematik nach Angeli	Angeli Kapitel 7.4
Parametrische ISV-Untersuchung	Jackson Kapitel 7.5
Abschätzung für $1s_5$ $3p_8$ Edelgasübergänge SME/NME = - 0.12(10)	diese Arbeit Kapitel 7.6
Isotonischer Plot Ba-Xe SME Ba aus μ-mesonischen ISV-Daten	diese Arbeit Kapitel 7.7
Bindungsenergieansatz	diese Arbeit Kapitel 7.8

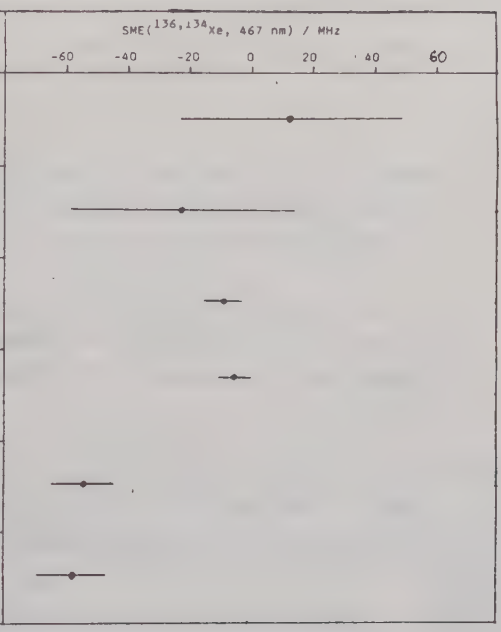

Abb. 6 Graphische Darstellung und Zusammenfassung der in diesem Kapitel ermittelten SME-Werte des 467 nm-Übergangs

Abb. 6 zeigt eine graphische Zusammenstellung aller ermittelter SME-Werte im Xe-467 nm-Übergang. Auffallend ist die Gruppierung der SME-Werte um zwei allerdings weit auseinanderliegende Werte von "-7 MHz" und "-56 MHz". Die nach der Heilig/Steudel-Abschätzung und nach der Angeli-Systematik berechneten SME-Werte sind wegen ihrer großen Fehler für die Auswertung genauer ISV-Daten unbrauchbar. Der Mittelwert paßt jedoch gut zur "-7 MHz"-Gruppe. Die in Abb. 6 eingezeichneten Fehlerbalken berücksichtigen lediglich die experimentellen Fehler der ISV-Daten nicht jedoch Fehler der verwendeten Modelle.

Für die weitere Auswertung der ISV-Daten entscheiden wir uns für einen SME-Wert von:

$$SME(^{136,134}Xe,\ 467\ nm) = -56(10)\ MHz,$$

weil:

1. μ-mesonische ISV-Daten /13/ des Nachbarelementes Barium indirekt (über einen Isotonischen Plot bzw. über die Bindungsenergierelation) in die Bestimmung eingehen.

2. bei einem Vergleich der SME-Werte der Elementepaare Ar/Ca /29/ und Kr/Sr /16,30,31/ sich zeigt, daß die Edelgasübergänge stets einen negativeren SME besitzen als die Alkaliübergänge.

Ausgehend von der Richtigkeit des SME im Ba-553 nm-Übergang von - 26(11) MHz ergibt sich mit einem SME von -56(10) MHz für Xenon die beste Übereinstimmung der SME-Daten der Ba-Xe-Paare.

Referenzen

/1/ K. Heilig, A. Steudel: Atomic Data and Nuclear Data Tables **14**, 613 (1974)

/2/ I. Angeli, M. Csatlos: Nucl.Phys. **A 288**, 488 (1977)

/3/ W. Fischer, H. Hühnermann, G. Krömer, H.J. Schäfer: Z.Phys. **270**, 113 (1974)

/4/ R. Wenz, E. Matthias, H. Rinneberg, F. Schneider: Z.Phys. **A 295**, 303 (1980)

/5/ R. Bruch, K. Heilig, D. Kalette, A. Steudel, D.Wendlandt: J.Phys. **30**, C1-51, (1969)

/6/ F. Boehm, P.L. Lee: Atomic and Nuclear Data Tables **14**, 605 (1974)

/7/ G.L. Borchert, P.G. Hansen, B. Jonson, H.L. Ravn, O.W.B. Schult: Jahresbericht der KFA Jülich, 29 (1976)

/8/ R.D. Wendling, V.H. Walther: Nucl.Phys. **A 219**, 450 (1974)
/9/ L.R.B. Elton: Nuclear Sizes. London, Oxford Univ. Press (1961)
/10/ K. Bekk, A. Andl, S. Göring, A. Hanser, G. Nowicki, H. Rebel, G. Schatz: Z.Phys. **A 291**, 219 (1979)
/11/ P.E.G Baird, R.J. Brambley, K. Burnett, D.N. Stacey, D.M. Warrington, G.K. Woodgate: Proc.R.Soc.Lond. **A 365**, 567, (1979)
/12/ A.P. Stone: Proc.Phys.Soc. **74**, 424 (1959)
/13/ E.B. Shera, H.D. Wohlfart, M.V. Hoehn, Y. Tanaka: Phys.Lett. **122 B**, 124 (1982)
/14/ D.A. Jackson, M.C. Coulombe, J. Bauche: Proc.R.Soc.Lond. **A 343**, 443 (1975)
/15/ H. Gerhardt, E. Matthias, H. Rinneberg, F. Schneider, A. Timmermann, R. Wenz, P.J. West: Z.Phys. **A 292**, (1979)
/16/ G. Fricke, G. Mallot, L. Schellenberg, L.A. Schaller, H. Schneuwly: to be published
/17/ F. Jeschonnek: Diplomarbeit FU Berlin, FB 20 (1980)
/18/ H. Daniel, H.J. Pfeiffer, K. Springer, P. Stoeckel, G. Backenstoss, L. Tauscher: Phys.Lett. **488**, 109 (1974)
/19/ W.J. Briscoe, H. Crannell, J.C. Bergstrom: Nucl.Phys. **A 344**, 475 (1980)
/20/ W.H. King, H.G. Kuhn, D.N. Stacey: Proc.R.Soc. **A 296**, 24 (1966)
/21/ C.S. Wu, L. Wilets: Ann.Rev.Nuc.Sci. **19**, 527 (1969)
/22/ O.I. Sumbaev, A.F. Mezentsev, V.I. Marushenko, A.S. Rylnikov, G.A. Ivanov: Sov.J.Nucl.Phys.**9**, 529 (1969)
/23/ W. Fischer, M. Hartmann, H. Hühnermann, H. Vogg: Z.Phys. **267**, 209 (1974)
/24/ M. Wilson: Phys.Lett. **65 A**, 213 (1978)

/25/ R.E. Silverans, G. Borghs, G. Dumont, J.M. Van den Cruyce: Z.Phys. **A 295**, 311 (1980)
/26/ D.A. Jackson, D.H. Tuan: Proc.R.Soc. **A 291**, 9 (1965)
/27/ P. Grundevik, H. Lundberg, L. Nilsson, G. Olsson: Z.Phys. **A 306**, 195 (1982)
/28/ S. Gerstenkorn: C.R. Acad.Sci.Ser. **B 268**, 1636 (1969)
/29/ A. Andl: KFK Bericht Nr. 3191 (1981)
/30/ R.D. Ehrlich: Phys.Rev. **173**, 1088 (1968)
/31/ E.R. Eliel: Dissertation FU Amsterdam (1982)

8. BERECHNUNG DER KERNLADUNGSRADIUSÄNDERUNGEN

8.1 XENON

8.1.1 E_i-Berechnung aus Feinstrukturdaten
8.1.2 E_i-Berechnung aus Hyperfeinstrukturdaten
8.1.3 Abschirmfaktor ß
8.1.4 Korrekturfunktion f(Z)
8.1.5 Xe-Kernladungsradiusänderungen

8.2 QUECKSILBER

8.2.1 Elektronischer Faktor F_i
8.2.2 SME des 436 nm-Übergangs
8.2.3 Berechnung der Kernladungsradiusänderungen

8. BERECHNUNG DER KERNLADUNGSRADIUSÄNDERUNGEN

Zur Bestimmung der Kernladungsradiusänderungen muß der Volumeneffekt aus den ISV-Daten extrahiert werden. Dies setzt eine Bestimmung des SME voraus, wie sie im vorangehenden Kapitel 7 durchgeführt wurde.
Erst danach kann mit Hilfe des elektronischen Faktors $F_i = E_i f(Z)$ der numerische Zusammenhang zwischen den VE und den entsprechenden Kernladungsradiusänderungen hergestellt werden. F_i wird in den folgenden Unterkapiteln nach den zur Verfügung stehenden Methoden berechnet.

8.1 XENON

Wie im Kapitel 3 dargestellt wurde, läßt sich der Volumeneffekt zwischen zwei Isotopen A und A' eines optischen Übergangs i auf die folgende Form bringen:

$$\delta\nu_{i,VE}^{A,A'} = E_i f(Z)\, \delta\langle r^2\rangle^{A,A'} \qquad (3\text{-}37)$$

mit

$$E_i = \frac{\pi a_0^3}{Z} \Delta \left|\psi_{S\to P}(0)\right|_i^2 \qquad (3\text{-}38)$$

$\Delta\left|\psi_{s\to p}(0)\right|_i^2$ steht für die gesamte Änderung der s-Elektronendichte bei dem s→p-Übergang am Kernort. Durch die Einführung eines Abschirmfaktors ß kann für die Elektronendichte bei s→p-Übergängen gemäß Gl. 3-44 geschrieben werden:

Da f(Z) für die stabilen Xe-Isotope praktisch konstant ist, und die höheren radialen Momente der Kernladungsverteilung ($\delta\langle r^4\rangle$, $\delta\langle r^6\rangle$ usw.) keinen nennenswerten Beitrag liefern (3%, /1/), werden die gesuchten Kernladungsradiusänderungen $\delta\langle r^2\rangle^{A,A'}$ direkt durch entsprechende Volumeneffekte beschrieben.

Zur Bestimmung von E_i muß die Änderung der Elektronendichte am Kernort bestimmt werden. Für den alkaliähnlichen 6s $|3/2|_2$ → 7p $|5/2|_3$ - Xenonübergang bei 467 nm kann man $|\Psi(0)|_{6s}$ sowohl aus Feinstruktur- als auch aus Hyperfeinstrukturdaten gewinnen.

8.1.1 E_i aus Xe-Feinstrukturdaten

Die nichtrelativistische Ladungsdichte des s-Elektrons am Kernort kann empirisch aus der Energie der s-Zustände mit Hilfe der Goudsmit-Fermi-Segrè-Formel bestimmt werden:

$$|\Psi_s(0)|^2_{ns} = \frac{Z Z_a^2}{\pi a_0^3 (n^*)^3}\left(\frac{dn^*}{dn}\right) \qquad (8\text{-}1)$$

mit
- Z = Kernladungszahl
- Z_a = effektive Kernladungszahl (Z_a = 1 für Atome)
- a_0 = Bohrscher Radius
- n = Hauptquantenzahl
- n^* = effektive Hauptquantenzahl.

Mit den n_s-Niveaudaten (n = 6 bis 15) von Moore /2/ erhält man mittels linearer Ausgleichsrechnung:

$$dn^*/dn = - 0.0192(5)$$

$$n^* (6s|3/2|_2) = 1.9(1).$$

Durch Einsetzen in Gl. 8-1 ergibt sich für die s-Elektronen-Dichte am Kernort:

$$|\psi_s(0)|^2_{6s} = - 0.151 \text{ a.u.}$$

8.1.2 E_i aus Xe-Hyperfeinstrukturdaten

Alternativ zu Kapitel 8.1.1 kann man die Elektronendichte des $6s|3/2|_2 \rightarrow 7p|5/2|_3$-Übergangs am Kernort auch mit Hilfe der magnetischen Dipolwechselwirkungskonstante a_{6s} des 6s-Elektrons der $6s|3/2|_2$-Konfiguration berechnen. Die Elektronendichte läßt sich nach Kopfermann /3/ wie folgt schreiben:

$$|\psi(0)|^2_{6s} = \frac{Z \cdot a_{6s}}{\pi a_0^3 \cdot \frac{8}{3} R_\infty \alpha^2 Z \frac{m}{M} g_i F_r (1-\delta)(1-\varepsilon)}$$

mit $a_s = - 4491(225)$ MHz /4/
$\mu(^{129}Xe) = - 0.77682(22)\ \mu_k$

$I(^{129}Xe) = 1/2$
$F_r = 1.3721$ /3/
$(1-\delta) = 0.96$
$(1-\varepsilon) = 0.995$

erhält man:

$$|\psi(0)|^2_{6s} = - 0.160 \text{ a.u.}$$

Als Mittelwert für $|\psi(0)|^2_{6s}$ aus Fein- und Hyperfeinstrukturdaten ergibt sich:

$$|\psi(0)|^2_{6s} = -0.154(4) \text{ a.u.}$$

8.1.3 Abschirmfaktor ß

Berechnungen von Abschirmfaktoren sind schwierig, wurden jedoch unter Verwendung von Hartree-Fock-Wellenfunktionen durchgeführt /5/. Entsprechende Rechnungen für den $6s|3/2|_2 \rightarrow 6p|1/2|_1$-Xenonübergang von Fischer /5/ ergaben folgenden Wert:

$$ß = 1.16 \ .$$

Dieses Ergebnis ist konsistent mit Rechnungen der Abschirmfaktoren für s→p-Übergänge der Elemente SnII, CsI und BAII.

8.1.4 Korrekturfunktion f(Z)

Nach Gl. 3-39 läßt sich die Korrekturfunktion wie folgt darstellen /6/:

$$f(Z) = \frac{5/2 \ \bar{A}^{1/3} C^{A,A'}_{UNIF}}{r_0^2 (A-A')}$$

mit $\bar{A} = 135$

$r_0 = 1.2$ fm

$C_{unif} = 2.55$ GHz /7/

erhält man für die stabilen Xenonisotope:

$$f(Z) = 11.4(1) \text{ GHz/fm}^2.$$

Die Massenabhängigkeit von f(Z) ist im angegebenen Fehler bereits enthalten.

8.1.5 Zusammenfassung der Xe-Kernladungsradiusänderungen

Setzt man alle Größen in Gl. 3-37 ein und formt um, so ergibt sich der folgende numerische Zusammenhang zwischen $\delta\langle r^2\rangle$ und $\delta\nu_{VE}$ im 467 nm-Übergang:

$$\delta\langle r^2\rangle^{A,A'} = -0.485(20)\,\delta\nu_{VE}^{A,A'} \quad \left[10^{-3}\ \text{fm}^2/\text{MHz}\right].$$

Tabelle 1 zeigt eine Zusammenstellung der ermittelten Kernladungsradiusänderungen. Eine eingehende Diskussion dieser Daten wird im Kapitel 10 durchgeführt.

Isotopenpaar	IS (MHz)	IS' (MHz)	$\delta\langle r^2\rangle$ (10^{-3} fm^2)
136,134	- 80.3(6)	-118.6(6)	30.4
134,132	- 36.5(3)	- 76.0(3)	8.9
132,130	- 36.3(3)	- 77.0(3)	8.5
130,128	- 44.7(5)	- 86.7(5)	12.3
128,126	- 48.5(3)	- 91.8(3)	13.8
126,124	- 65.2(4)	-109.9(4)	21.6
133,131	- 33.6(6)	- 73.7(6)	7.3
131,129	- 24.0(6)	- 65.3(6)	2.4
129,127	- 59.6(6)	-102.2(6)	19.4
136,131	-187.8(6)	-285.8(6)	69.2

Tab. 1 Xe-Kernladungsradiusänderungen abgeleitet aus den in dieser Arbeit gemessenen ISV im 467 nm-Übergang

8.2 QUECKSILBER

8.2.1 Elektronische Faktoren F_i

Die Berechnung des elektronischen Faktors F_i kann umgangen werden, wenn man die optischen ISV-Daten mit K_α - oder μ-mesonischen Röntgen-ISV-Daten kalibrieren kann. Die Kalibrierung geschieht über einen King-Plot (siehe Kapitel 3 und 7).

Für die stabilen Hg-Isotope liegen geeignete K_α - und μ-mesonische ISV-Daten vor, mit denen der F-Faktor für den 253.7 nm-Übergang bestimmt wurde. Tabelle 2 faßt die Ergebnisse zusammen.

$F_{253.7}$ [GHz/fm²]	- 57.4(29)	-55.1(31)	-44.9(50)
Ref.	μ-meson. /1/	K_α /8/	Rechnung aus opt. Daten /9/

Tab. 2 Zusammenstellung der $F_{253.7\ nm}$-Faktoren verschiedener Autoren

Abb. 1 zeigt einen King-Plot optischer Hg-ISV-Daten des 253.7 nm-Übergangs mit Resultaten von Messungen (siehe Tab. 3, Kapitel 6) in der 436 nm- und 546 nm-Linie. Die Steigungen dieser Geraden enthalten das Verhältnis der F-Faktoren F_i/F_j der beteiligten Übergänge i und j.

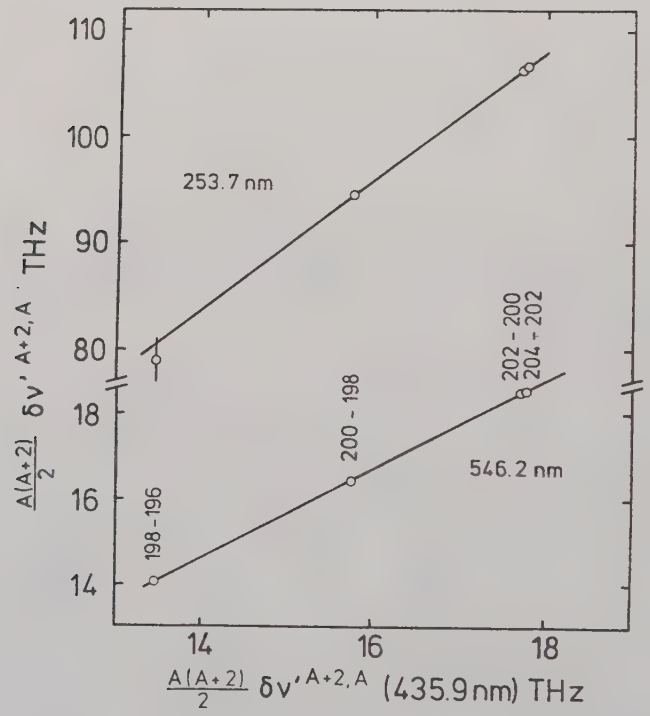

Abb. 1 King-Plot optischer Hg-ISV-Daten

Eine numerische Auswertung der Steigungen der King-Geraden ergibt für die F-Faktoren der 436 nm- und 546 nm-Übergänge die in Tabelle 3 zusammengefaßten Werte.

Übergang	436 nm	546 nm	254 nm
F_i (GHz/fm²)	9.2(6)	9.6(6)	− 56(2)
Ref.	diese Arbeit	diese Arbeit	Mittelwert aus /1/ und /8/

Tab. 3 Zusammenfassung von Hg-F_i-Faktoren

8.2.2 Spezifischer Masseneffekt des 436 nm-Übergangs

Der Achsenabschnitt der King-Geraden in Abb. 1 ermöglicht die Bestimmung des SME aller untersuchten Übergänge, sofern der SME einer der Übergänge bekannt ist (siehe Kapitel 3).

In der Vergangenheit wurde der SME in Übergängen schwerer Atome im allgemeinen wegen seiner $1/A^2$-Abhängigkeit im Vergleich zum Volumeneffekt vernachlässigt.
Neuere ISV-Untersuchungen in μ-mesonischen /1/ und K_α-Übergängen /10/ der Elemente Quecksilber und Blei weisen auf SME hin, die -allerdings innerhalb großer Fehlergrenzen- mehr als das Zwanzigfache des NME betragen können.

Für den 253.7 nm-Übergang bestimmen Fricke et al. /1/ einen SME von 436(305) MHz. Damit folgt aus Abb. 1 ein Achsenabschnitt von − 1.7 THz, welcher zu einem SME von:

$$SME(Hg_{436\ nm}) = +60(50)\ MHz$$ führt.

8.2.3 Berechnung der Kernladungsradiusänderungen

Mit diesem SME und dem $F_{436\ nm}$-Faktor aus Tabelle 3 ergeben sich gemäß Gl. 3-37 die in Tabelle 4 zusammengefaßten Kernladungsradiusänderungen der geraden, stabilen Quecksilberisotope. Zum Vergleich sind auch die Ergebnisse anderer Autoren mitaufgeführt.

Paare A,A'	$\delta \langle r^2 \rangle / 10^{-3}\ fm^2$		
	diese Arbeit	X-ray /8/	optisch /9/
204,202	87(12)	99(28)	117(13)
202,200	89(12)	95(8)	118(26)
200,198	80(11)	103(26)	108(38)
198,196	69(10)	----	92(48)

Tab. 4 Zusammenfassung der Hg-Kernladungsradiusänderungen. Alle Angaben sind in 10^{-3} fm².

Eine weitere Diskussion sowohl des SME als auch der Kernladungsradiusänderungen wird im Kapitel 10 vorgenommen.

Referenzen

/1/ G. Fricke et al.: Proceedings of 4th International Conference on Nuclei far from Stability, **Vol. 1**, 33 (1981)

/2/ C.E. Moore: Atomic Energy Levels, NBS **Vol. 3** (1958)

/3/ H. Kopfermann: Nuclear Moments, Academic Press (1958)

/4/ W.L. Faust, M.N. McDermott: Phys.Rev. **123**, 198 (1961)
/5/ W. Fischer, H. Hühnermann, G. Krömer, H.J. Schäfer: Z.Phys. **270**, 113 (1974)
/6/ K. Heilig, A. Steudel: Atomic Data, Nuclear Data Tables **14**, 613 (1974)
/7/ F.A. Babushkin: Sov.Phys.JETP **17**,1118 (1963)
/8/ P.L. Lee, F. Boehm, A.A. Hahn: Phys.Rev. **C 17**, 1859 (1978)
/9/ J. Bonn, G. Huber, H.J. Kluge, E.W. Otten: Z.Phys. **A 276**, 203 (1976)
/10/ G.L. Borchert et al. Proceedings of 4th International Conference on Nuclei far from Stability, **Vol. 1**, 56 (1981) Denmark

9. BESTIMMUNG DER MAGNETISCHEN UND ELEKTRISCHEN KERNMOMENTE DER ISOTOPE ^{127}Xe und ^{133}Xe

9.1 FREQUENZLAGENBESTIMMUNG DER HYPERFEINLINIEN

9.2 HYPERFEINANOMALIE UND KERNMOMENTE

9.3 DISKUSSION DER KERNMOMENTE
9.3.1 ^{127}Xe
9.3.2 ^{133}Xe

9. BESTIMMUNG DER MAGNETISCHEN UND ELEKTRISCHEN KERNMOMENTE DER ISOTOPE $^{127,133}Xe$

Dieses Kapitel stellt die Fortsetzung des Kapitels 6.3 dar, in dem die (gemäß Gl. 3-9) aus den gemessenen Frequenzabständen bestimmten A- und B-Faktoren der untersuchten HFS-Übergänge zusammengestellt werden.

Da im Fall der Xenonisotope keine meßbare Hyperfeinanomalie vorliegt (siehe 9.2), können die Kernmomente μ und Q der radioaktiven Isotope über A- bzw. B-Faktorenverhältnisse bestimmt werden. Die so ermittelten Werte werden mit den bekannten Kernmomenten der Nachbarelemente Barium und Tellur verglichen.

9.1 FREQUENZLAGENBESTIMMUNG DER HYPERFEINLINIEN

Die Frequenzlagen aller möglichen Hyperfeinübergänge der stabilen Isotope ^{129}Xe und ^{131}Xe wurden in den Übergängen bei 462 nm und 467 nm bestimmt. Wegen der im Vergleich zur Doppler-Breite hohen Hyperfeinniveaudichte des Isotops ^{131}Xe treten bei diesem Isotop zusätzlich eine große Anzahl von Cross-Over-Signalen auf. Diese Signale liegen frequenzmäßig genau zwischen zwei zugehörigen Hyperfeinübergängen (siehe Kapitel 4.2.1) und erweitern dadurch die Hyperfeinstrukturinformation.

Im Fall der radioaktiven Isotope ^{127}Xe und ^{133}Xe war es diesen Cross-Over-Signalen zu verdanken, daß ausreichend viele Linien zur Bestimmung der Hyperfeinkopplungskonstanten zur Verfügung standen.

Entsprechend dem Kurvenanpassungsverfahren bei den Sättigungssignalen der geraden Xe-Isotope (siehe Kapitel 5) wurden sowohl den Hyperfein- als auch den Cross-Over-Signalen Lorentz-Linien angepaßt.

In Tabelle 1 ist die Anzahl der Hyperfeinlinien bzw. der Cross-Over-Signale zusammengestellt, die für die jeweiligen Übergänge und Isotope zur Bestimmung der A- und B-Faktoren verwendet wurde.

Übergang	Anzahl der HF- und CO-Signale			
	^{127}Xe	^{129}Xe	^{131}Xe	^{133}Xe
458 nm	———	2	3	———
462 nm	4	4	23	5
467 nm	3	3	14	7

Tab. 1 Gesamtzahl der für die Berechnung der Hyperfeinkopplungskonstanten verwendeten Linien

Die Berechnung der HF-Kopplungskonstanten der stabilen Isotope wurde durch Lösung von mehrfach überbestimmten Gleichungssystemen durchgeführt (vgl. Kapitel 3, Gl. 3-9). Die Abweichungen zwischen gemessenen und berechneten Frequenzlagen betragen weniger als 500 kHz, wie Tabelle 2 am Beispiel des Isotops ^{131}Xe im 462 nm-Übergang zeigt.

Bezeichnung	Meßwert/MHz	Fitwert/MHz	Abweichung/MHz
5/2-3/2	- 128.5	- 128.53	.03
3/2-1/2	- 23.2	- 22.96	- .24
1/2-1/2	- 323.7	- 324.22	.52
7/2-5/2	- 582.1	- 582.78	.68
3/2-3/2	- 635.9	- 635.70	- .20
1/2-3/2	- 937.2	- 936.96	- .24
5/2-5/2	-1303.3	-1303.43	.13
3/2-5/2	-1810.8	-1810.59	- .21
7/2-7/2	-2550.5	-2550.33	- .17
5/2-7/2	-3270.9	-3270.98	.08
1/2,3/2-1/2	- 173.6	- 173.59	- .01
3/2,5/2-3/2	- 382.1	- 382.11	.01
1/2,5/2-3/2	- 532.5	- 532.75	.25
1/2,3/2-3/2	- 786.4	- 786.33	- .07
5/2,7/2-5/2	- 943.6	- 943.10	- .50
3/2,7/2-5/2	-1196.0	-1196.68	.68
3/2,5/2-5/2	-1556.9	-1557.01	.11
5/2,7/2-7/2	-2910.9	-2910.65	- .25
5/2,3/2-3/2,1/2	- 75.9	- 75.75	- .15
1/2,1/2-5/2,3/2	- 226.4	- 226.38	- .02
1/2,3/2-3/2,1/2	- 479.8	- 479.96	.16
5/2,5/2-3/2,3/2	- 969.6	- 969.56	- .04
7/2,7/2-3/2,5/2	-2179.7	-2181.14	1.44

Tab. 2 Vergleich zwischen gemessenen und gerechneten relativen Frequenzlagen der Hyperfeinlinien und Cross-Over-Signale des Isotops ^{131}Xe im 462 nm-Übergang

Tabelle 3 zeigt eine Zusammenstellung aller in dieser Arbeit ermittelten HF-Kopplungskonstanten. Zum Vergleich sind die in der Literatur existierenden Bestwerte anderer Autoren mitaufgeführt.

Niveau	$A(^{127}Xe)$/MHz	$A(^{129}Xe)$/MHz	$A(^{131}Xe)$/MHz	$B(^{131}Xe)$/MHz	$A(^{133}Xe)$/MHz	$B(^{133}Xe)$/MHz	Ref.
$6s/3/2/_2$	-1543.7(5)	-2384.5(1)	706.4(1)	252.5(4)	830.1(4)	-306(1)	
	-----	-2384.5031(4)	706.47422(18)	252.5263(6)	------	------	/1/
$6s/3/2/_1$	-----	- 956(2)	282.2(5)	89.6(10)	------	------	
	-----	- 964(3)	285.9(9)	87(18)	------	------	/2/
$7p/3/2/_2$	- 610.8(5)	- 943.4(6)	279.8(1)	8.3(7)	328.5(2)	- 9.2(10)	
	-----	- 941(12)	-----	--------	------	------	/2/
	-----	-------	-----	12	------	------	/3/
$7p/5/2/_3$	- 544.0(5)	- 839.9(5)	249.0(8)	255.0(3)	292.4(4)	-309(1)	
	-----	- 840(6)	-----	--------	------	------	/2/
	-----	-------	-----	252	------	------	/3/

Tab. 3 Zusammenstellung der in dieser Arbeit gewonnenen A- und B-Faktoren. Falls vorhanden, sind zum Vergleich die besten Ergebnisse anderer Autoren mitaufgeführt.

Auffallend ist zum einen die sehr gute Übereinstimmung der A- und B-Faktoren dieser Arbeit mit den extrem genauen Werten der von Faust et al. /1/ mittels ABMR-Methoden erzielten Ergebnisse. Zum anderen wurde die Genauigkeit der mit optischen Methoden bestimmten A- und B-Faktoren um mehr als eine Größenordnung erhöht und gleichzeitig auf zwei radioaktive Isotope ausgedehnt.

9.2 HYPERFEINANOMALIE UND KERNMOMENTE DER ISOTOPE ^{127,129,131,133}XE

Für die im Kapitel 3.3 definierte Hyperfeinanomalie ergibt sich nach den ABMR-Messungen von Faust et al. /1/ für das 6s $|3/2|_2$-Niveau folgender Wert:

$$^{129}\Delta^{131} = \frac{A(^{129}Xe)\cdot g_I(^{131}Xe)}{A(^{131}Xe)\cdot g_I(^{129}Xe)} - 1 = +\,4.4(4)*10^{-4} \quad .$$

Dieses Ergebnis ist um mehr als eine Größenordnung kleiner als der nach dem "Single-Particle"-Modell von Bohr und Weisskopf /4/ berechnete Wert.
Durch Vergleiche der in dieser Arbeit ermittelten A-Faktorenverhältnisse zwischen verschiedenen Niveaus und Isotopen ist man in der Lage, aus Unregelmäßigkeiten der A-Faktorenverhältnisse auf eine Hyperfeinanomalie zu schließen.

In Tabelle 4 sind entsprechende A-Faktorenverhältnisse zusammengestellt. Für das 6s $|3/2|_2$-Niveau ergibt sich jedoch im Vergleich zu den 7p-Niveaus kein signifikanter Unterschied, der als Anomalie gedeutet werden müßte.

Isotope i/k	Kernspin-verhältnisse	$A_i/A_k = (\mu_i I_k)(1 - \Delta_{ik})/\mu_k I_i$			Referenz
		$6s\|3/2\|_2$	$7p\|3/2\|_2$	$7p\|5/2\|_3$	
131/129	3/1	- 0.296437(4)	------	-------	Faust et al. [11]
		- 0.29625(4)	- 0.2966(2)	- 0.2965(9)	diese Arbeit
133/131	1/1	+ 1.1751(6)	+ 1.1740(7)	+ 1.174(3)	diese Arbeit
133/129	3/1	- 3.4812(2)	- 3.4821(2)	- 3.4814(5)	diese Arbeit
127/131	1/3	- 2.1853(3)	- 2.183(2)	- 2.185(7)	diese Arbeit
127/129	1/1	+ 0.6474(2)	+ 0.6474(5)	+ 0.6477(6)	diese Arbeit

Tab. 4 Experimentelle A-Faktorenverhältnisse der in dieser Arbeit untersuchten Xe-Niveaus

Wegen der Kleinheit des Wertes der Anomalie darf man die magnetischen Momente von ^{127}Xe und ^{133}Xe direkt über die bekannten Momente der stabilen Isotope ^{129}Xe und ^{131}Xe berechnen. Eine Zusammenstellung der so bestimmten Kernmomente liefert Tabelle 5.

Referenz-isotop	$\mu(^{127}Xe)$		
	$6s\|3/2\|_2$	$7p\|3/2\|_2$	$7p\|5/2\|_3$
^{131}Xe	- 0.5040(1)	- 0.5034(21)	- 0.5039(16)
^{129}Xe	- 0.5037(2)	- 0.5037(4)	- 0.5039(5)
	$\mu(^{133}Xe)$		
^{131}Xe	0.8130(4)	0.8122(5)	0.812(2)
^{129}Xe	0.8125(5)	0.8127(5)	0.812(1)

Tab. 5 Zusammenstellung der magnetischen Kernmomente von $^{127,133}Xe$, gewonnen über A-Faktorenverhältnisse verschiedener Xenonniveaus .

Als gewogenes Mittel der Ergebnisse aus allen untersuchten Niveaus erhält man:

$\mu(^{127}Xe) = - 0.5039(2)$ n.m. und

$\mu(^{133}Xe) = + 0.8125(3)$ n.m.

Als Referenzwerte wurden die magnetischen Momente von ^{129}Xe bzw. von ^{131}Xe verwendet.

Die Bestimmung des Kernquadrupolmoments für ^{133}Xe wurde nach demselben Verfahren durchgeführt. Hierzu sind in Tabelle 6 die experimentell bestimmten B-Faktorenverhältnisse zusammengestellt.

Isotopen-	B_i/B_k		
paare i/k	$6s\|3/2\|_2$	$7p\|3/2\|_2$	$7p\|5/2\|_3$
133/131	- 1.211(4)	- 1.1(2)	- 1.212(4)

Tab. 6 Experimentelle B-Faktorenverhältnisse in den untersuchten Xe-Niveaus

Unter Verwendung von $Q(^{131}Xe = -0.120(12))$ /6/ ergibt sich $Q(^{133}Xe) = B(^{133}Xe)/B(^{131}Xe)*Q(^{131}Xe)$ zu:

$$Q(^{133}Xe) = + 0.145(14)\ b\ .$$

Dieser Wert enthält ebenfalls keine Korrekturen eventueller Polarisationseffekte am Elektronenrumpf (Sternheimer-Effekt /5/). Die in dieser Arbeit gefundenen Momente des Isotops ^{133}Xe sind in guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen von Hühnermann et al. /7/, jedoch von wesentlich höherer Genauigkeit.

9.3 DISKUSSION DER KERNMOMENTE UND VERGLEICH MIT DEN MOMENTEN DER NACHBARELEMENTE BARIUM UND TELLUR

Die aus den experimentell bestimmten HFS-Aufspaltungen der ungeraden Xe-Isotope bestimmten magnetischen Dipol- und elektrischen Quadrupolmomente sind in Tabelle 7 im Vergleich zu den Momenten der Nachbarelemente Ba und Te aufgeführt. Die Annahme, daß die Kernmomente der ungeraden Xe-Isotope in der Hauptsache durch die $3s_{1/2}$, $2d_{3/2}$ oder $1h_{11/2}$ Neutronen-

niveaus bestimmt werden, legt den Vergleich mit den isotonen Elementen natürlich nahe.

I	N	Nuclide	$\mu^{exp}_{(n.m.)}$	$\mu^{cal}_{(n.m.)}$	$\mu^{shell}_{(n.m.)}$	$Q^{exp}_{(b)}$	$Q^{cal}_{(b)}$
$1/2^+$	73	^{125}Te	-0.88828(3)	-0.89 /8/	-1.15		
		^{127}Xe	-0.5039 (2)				
		^{129}Ba	-0.397 (6)				
	75	^{129}Xe	-0.77976(9)	-0.76 /8/			
		^{131}Ba	-0.707 (6)				
	77	^{133}Ba	-0.776 (2)				
$3/2^+$	75	^{127}Te	0.66 (5)		0.69		
	77	^{129}Te	0.66 (5)	0.75 /8/		-0.120(12)	-0.10 /8/
		^{131}Xe	0.69186(4)				
	79	^{133}Xe	0.8125 (3)	0.73 /8/		+ 0.145(14)	-0.208 /8/
			0.81 (1) /7/	0.73 /9/		+ 0.12 (41) /7/	-0.23 /9/
		^{135}Ba	0.83794(2)	0.77 /11/		0.18 (2)	+0.184 /11/

Tab. 7 Vergleich experimenteller und theoretischer Kernmomente isotoner Te-, Xe- und Ba-Isotope

9.3.1 ^{127}Xe

Im Gegensatz zu den Isotopen ^{129}Xe und ^{131}Xe wird das magnetische Moment des Isotops ^{127}Xe durch das "Particle-Vibrator-Coupling" - Modell /8/ nur schlecht beschrieben.
Verfolgt man den Verlauf der magnetischen Momente vom ^{125}Te über ^{127}Xe zum ^{129}Ba (siehe Tab. 7), so erkennt man, daß dabei mehr und mehr ein Verlust des "Single-Particle" - Charakters des Grundzustandes eintritt. Aufgrund dieser Tatsache ist es wahrscheinlich sinnvoller, das "Quasi-particle"- /9/ oder die "Hole-Cluster"-Formulierung zur Beschreibung der magnetischen Momente zu verwenden. Eine Berechnung der magnetischen Momente mit diesen Modellen wurde jedoch nicht durchgeführt.

9.3.2 ^{133}Xe

Die Berechnung des magnetischen Moments $\mu(^{133}Xe)$ nach dem "Single-Particle"- /8/ oder nach dem "Neutron-Hole-Cluster"-Modell /9/ zeigt nur mäßige Übereinstimmung mit dem experimentellen Wert, und für das Quadrupolmoment $Q(^{133}Xe)$ kann nicht einmal das Vorzeichen richtig wiedergegeben werden.
Mit letzterem Modell kann man jedoch das Vorzeichen von $Q(^{133}Xe)$ richtig erhalten, wenn man für die "Single-Neutron-Hole"-Energie die sogenannte "Gold"-Parametrisierung /9/anwendet.

Eine gute Beschreibung der ^{133}Xe-Kernmomente läßt sich wahrscheinlich mit dem "Vibrational-Core-Plus-Particle"-Modell /10/ erhalten. Dieses Modell beschreibt sehr gut die gestörten "Unique-Parity"-Rotationsbanden aller ungeraden Xe-Isotope.

Mit diesem Modell konnten die Grundzustandsmomente des Isotops ^{135}Ba zufriedenstellend berechnet werden /11 /. Es wurde im Rahmen dieser Arbeit nicht versucht, diese Methode zur Berechnung der Kernmomente des Isotops ^{133}Xe anzuwenden.

REFERENZEN

/1/ W.L. Faust, M.N. McDermott: Phys.Rev. **123**, 198 (1961)

/2/ D.A. Jackson, M.C. Coulombe: Proc.R.Soc.Lond. **A 335** 127 (1973)

/3/ S. Liberman: J.Physique **32**, 867 (1971)

/4/ A. Bohr, V.F. Weisskopf: Phys.Rev. **77**, 94 (1950)

/5/ R.M. Sternheimer: Phys.Rev. **95**, 736 (1954); Phys.Rev. **105**, 158 (1957)

/6/ C.M. Lederer, V.S. Shirley: Table of Isotopes, 7th edition, John Wiley & Son, Inc. New York-London-Sidney

/7/ H. Hühnermann, H. Valentin, H. Wagner: Z.Phys. **A 285**, 229 (1978)

/8/ T. Paradellis, S. Hontzeas: Nucl.Phys. **A 14**, 400 (1969)

/9/ V. Paar, B.K.S. Koene: Z.Phys. **A 279**, 203 (1976)

/10/ H. Helppi, J. Hattula, A. Luukko, M. Jääskelainen: Nucl.Phys. **A 357**, 333 (1980)

/11/ D.C. Palmer, R.C. Morgan, J.R. Cresswell, P.D. Forsyth, I. Hall, W. Maynard, D.J. Thomas: J.Phys.G.: Nucl.Phys. **2**, 421 (1976)

10. DISKUSSION DER KERNLADUNGSRADIUSÄNDERUNGEN

10.1 INTEGRALE ÄNDERUNG DER MITTLEREN QUADRATISCHEN KERNLADUNGSRADIUSÄNDERUNGEN DER XENONISOTOPE

10.2 VERGLEICH DER MITTLEREN QUADRATISCHEN KERNLADUNGSRADIEN MIT BERECHNUNGEN NACH DEM DROPLET-MODELL

10.3 DEFORMATIONS- UND HAUTDICKENBEITRÄGE DER KERNLADUNGSRADIUSÄNDERUNGEN

10.4 ZUSAMMENHANG ZWISCHEN KERNLADUNGSRADIEN UND BINDUNGSENERGIE PRO NUKLEON
10.4.1 Elemente des mittelschweren Massenbereichs: Xe-Cs-Ba
10.4.2 Elemente des schweren Massenbereichs: Hg-Pb

10.5 ISOTONISCHE VERGLEICHE VON ISOTOPIEVERSCHIEBUNGEN
10.5.1 Xe-Cs-Ba
10.5.2 Hg-Pb

10.6 ODD-EVEN-STAGGERING

10. DISKUSSION DER KERNLADUNGSRADIUSÄNDERUNGEN

Im Verlaufe dieses Kapitels werden die in dieser Arbeit gewonnenen Kernladungsradien bzw. Isotopieverschiebungen diskutiert und mit einigen, die Kernradien beschreibenden Modellen verglichen. Neben der Beschreibung mit Hilfe des $A^{1/3}$- /1/ und des Droplet-Modells /2/ wird der Einfluß der Kerndeformation und der von Hautdickeneffekten auf die Radiusänderungen untersucht. Des weiteren werden Zusammenhänge zwischen der Bindungsenergie pro Nukleon und der ISV aufgezeigt.

Die Gültigkeit des Isotonischen Plots wird anhand der Elementepaare Xe-Ba, Ba-Cs und Hg-Pb überprüft und zur Bestimmung des SME sowie zur Vorhersage von unbekannten ISV herangezogen. Die Konsistenz der aus dem Isotonischen Plot und aus dem Bindungsenergie-Modell nach Gerstenkorn /3/ und Wenz et al. /4/ abgeleiteten Vorhersagen wird überprüft.
Durch Vergleich der Kernladungsradiusänderungen zwischen Xe-Isotopen mit gerader und ungerader Neutronenzahl wird der Staggering-Parameter ermittelt.

10.1 INTEGRALE ÄNDERUNG DER MITTLEREN QUADRATISCHEN KERNLADUNGSRADIEN DER XENONISOTOPE

Ausgehend vom magischen Kern mit der Neutronenzahl N = 82 sind die Änderungen der Xe-Kernladungsradien in Abb. 1 integral und in Abb. 2 differentiell in Abhängigkeit von der Neutronen- bzw. der Massenzahl dargestellt, basierend auf ISV- bzw. $\delta\langle r^2\rangle$-Daten der Tabelle 1 des Kapitels 8. Es fällt auf, daß

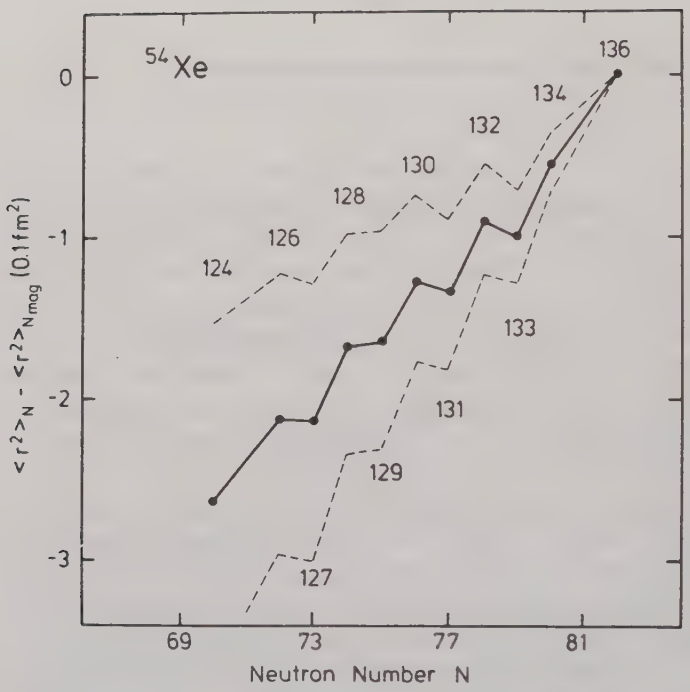

Abb. 1 Integrale Darstellung von Xe-Kernladungsradiusänderungen bei einem SME von 0 MHz

- die Kernladungsradiusänderungen $\delta\langle r^2\rangle^{A+2,A}$ stets positiv sind,
- die Werte selbst jedoch mit steigender Neutronenzahl abnehmen,
- beim Paar ^{136,134}Xe, das den magischen Kern enthält, wieder eine sprunghafte Zunahme der Radiusänderungen auftritt,
- die ungeraden Isotope ^{127,129,131,133}Xe ein stark ausgeprägtes Odd-Even-Staggering zeigen, vergleichbar mit den Verhältnissen beim Cs /5/ und beim Ba /6/,
- die Radien aller geraden Xe-Isotope $\langle r^2\rangle^A$ kleiner als die Radien der benachbarten, neutronenreicheren ungeraden Isotope $\langle r^2\rangle^{A+1}$ sind (Ausnahme: $\langle r^2\rangle^{128} > \langle r^2\rangle^{129}$),

- absolut gesehen alle Radiusänderungen wesentlich (fast eine Größenordnung) kleiner sind als nach dem $A^{1/3}$-Gesetz zu erwarten wäre (siehe Abb. 5).

Neben Xenon wurden mit diesem Laserspektrometer Isotopieverschiebungsuntersuchungen an den Edelgasen Argon und Krypton /7/ vorgenommen. Dies erlaubt die vergleichende Untersuchung der Kernladungsradiusänderungen, wie sie in Abb. 2 für die untersuchten Edelgase wiedergegeben sind.

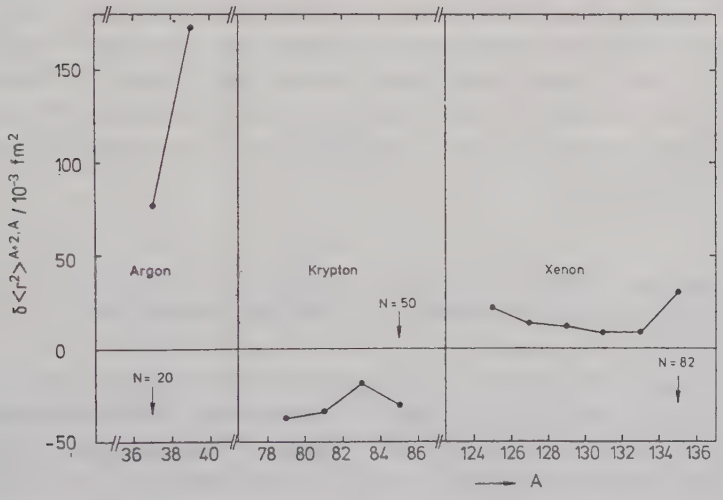

Abb. 2 Kernladungsradiusänderungen der Edelgase Ar, Kr und Xe, bestimmt aus ISV-Messungen in optischen Übergängen

Beim Krypton fällt auf, daß im Gegensatz zu den Verhältnissen beim Argon und Xenon die Radiusänderungen stets negativ sind. Die Absolutwerte der Radiusänderungen $\delta\langle r^2\rangle$ steigen beim Abschluß der $g_{9/2}$-Kr- /9/ und der $h_{11/2}$-Xe-Neutronenschalen stark an. Beim Argon liegen keine entsprechenden Meßdaten vor. Hier wird jedoch der auch bei anderen Elementen beobachtete starke Anstieg der Ladungsradiusänderungen am Anfang einer neuen Neutronenschale $f_{7/2}$ -Ar beobachtet.

Die Radiusänderungen der zu den Edelgasen isotonen Kerne der Nachbarelemente Ca, Sr und Ba verlaufen sehr ähnlich. Diese Ähnlichkeit ist insbesondere beim Barium gut ausgeprägt und läßt sich dort über eine große Anzahl von Isotopenpaaren verfolgen (6 Paare). Letztlich ist diese Ähnlichkeit der physikalische Grund für das "Funktionieren" des Isotonischen Plots (Kapitel 10.4).

10.2 VERGLEICH DER MITTLEREN QUADRATISCHEN KERNLADUNGSRADIEN MIT BERECHNUNGEN NACH DEM DROPLET-MODELL

Das von Myers und Swiatecki /2/ entwickelte Droplet-Modell stellt eine Verfeinerung des Flüssigkeitstropfen-Modells dar. Es handelt sich um einen Formalismus zur makroskopischen Beschreibung der Bindungsenergie und der räumlichen Ausdehnung eines aus zwei Komponenten (Neutron, Proton) bestehenden Systems. Die zur numerischen Beschreibung verwendeten Parameter werden durch Anpassung an experimentell ermittelte Bindungsenergien festgelegt. Die Übereinstimmung der dann nach dem Droplet-Formalismus berechneten Bindungsenergien mit den experimentellen Werten ist besser als 1% . Dies läßt vermuten, daß die Berechnung von Kerndichteverteilungen bzw. Kernladungsradien mit dem Droplet-Modell ähnlich gut gelingt.

Das Droplet-Modell ist eine semiempirische parametrische Beschreibung, die sich besser zur Beschreibung von Kernladungsradiusänderungen eignet als seine Vorgänger, da

1. dieses Modell eine sehr gute Beschreibung der Protonen- bzw. der Neutronenradiusdifferenzen aller magischen Kerne vom ^{16}O bis zum ^{208}Pb liefert;

2. es in Übereinstimmung mit Isotopieverschiebungsmessungen wesentlich kleinere Kernladungsradiusänderungen vorhersagt, als nach dem $A^{1/3}$-Gesetz zu erwarten wären.

Jedoch werden Einflüsse, wie Kerndeformationen oder Hautdickenänderungen vom ursprünglichen Droplet-Modell /2/ nicht erfaßt und müssen separat berücksichtigt werden.

Paare	$\delta\langle r^2\rangle : A^{1/3}$	$\delta\langle r^2\rangle$ Droplet	$\delta\langle r^2\rangle_{exp}$	Droplet-$\delta\langle r^2\rangle_{exp}$
136,134	224.6	108.6	30.4	78.2
134,132	225.7	108.3	8.9	99.4
132,130	226.8	108.2	8.5	99.7
130,128	228.0	107.9	12.3	95.6
128,126	229.2	107.7	13.8	93.9
126,124	230.4	107.6	21.6	86.0

Tab. 1 Vergleich der nach dem $A^{1/3}$-Gesetz und nach dem Droplet-Modell berechneten mit den in dieser Arbeit ermittelten Kernladungsradiusänderungen. In der letzten Reihe wird die Diskrepanz zwischen berechneten und gemessenen Kernladungsradien dargestellt. Alle Werte sind in 10^{-3} fm².

Tabelle 1 zeigt eine Zusammenstellung der Kernladungsradien der stabilen Xenonisotope im Vergleich zu den Vorhersagen nach dem $A^{1/3}$-Gesetz und dem Droplet-Modell. Die Differenz zwischen den in dieser Arbeit ermittelten $\delta\langle r^2\rangle$ und Berechnungen nach dem Droplet-Modell könnte nur durch einen sehr großen (positiven) SME kompensiert werden. Dies ist jedoch sehr unwahrscheinlich (vgl. Kapitel 7.9).

10.3 DEFORMATIONS- UND HAUTDICKENBEITRÄGE DER KERNLADUNGS-RADIUSÄNDERUNGEN

Qualitativ wurde vorhergesagt /8/, daß im mittelschweren Massenbereich die Deformation der Kerne ober- und unterhalb der magischen Neutronenzahl N = 82 zunimmt. Diese Vorhersage wurde jetzt für die Elemente Ba, Cs und Xe experimentell bestätigt. Für die Xe-Isotope konnten aus B(E2)-Messungen an stabilen Kernen Werte für den Deformationsparameter ß abgeleitet werden. Die Ergebnisse verschiedener Autoren /9,10,11/ sind in Abb. 3 graphisch gemittelt dargestellt.

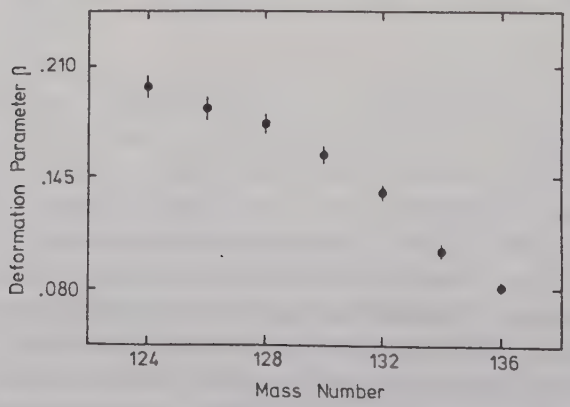

Abb. 3 Gemittelte Werte für den Deformationsparameter ß, abgeleitet aus B(E2)-Messungen

Für den Massenbereich jenseits von N = 82 (^{136}Xe) liegen keine experimentellen B(E2)-Werte für die Xe-Isotope vor, jedoch dürften die Deformationsverhältnisse denen der Ba-und Cs-Isotone ähnlich sein.

Zur Untersuchung der Frage, inwieweit die gemessene ISV allein durch Änderungen der Kerndeformation verursacht wird, trägt man wie in Abb. 4 dargestellt wird, die Kernladungsradiusänderungen als Funktion der Deformationsänderungen auf. Im Gegensatz zu den Verhältnissen bei den stabilen Kryptonisotopen /7/ ist kein einheitlicher linearer Zusammenhang über den untersuchten Xe-Massenbereich feststellbar. Die Punkte für die Isotopengruppe ^{134,132,130,128}Xe und ^{128,126,124}Xe zeigen jedoch für sich

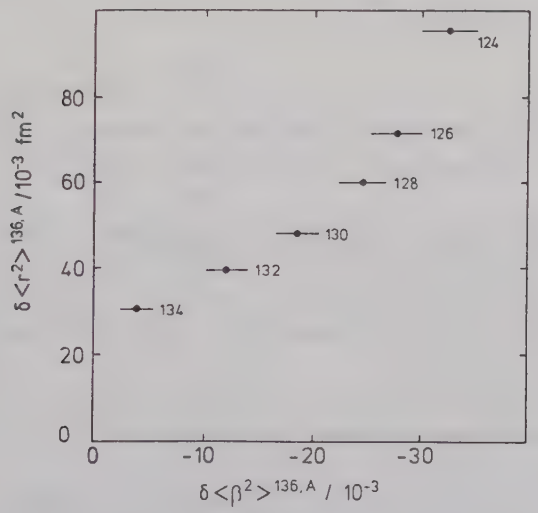

Abb. 4 Integrale Darstellung der Kernladungsradiusänderungen als Funktion der Kerndeformationsänderungen

eine lineare Abhängigkeit, die den Einfluß von Deformationsänderungen auf die Kernladungsänderungen aufzeigt, wenngleich auch der Einfluß der Deformation für verschiedene Isotopengruppen unterschiedlich groß ist. Für die leichten Xenonisotope $^{128,126,124}Xe$ wirkt sich eine kleine Deformationsänderung wesentlich stärker auf die Radiusänderung aus, als dies bei den schwereren Isotopen $^{134,132,130,128}Xe$ der Fall ist. Deformationsänderungen können daher nicht der einzige Grund für die beobachteten Radiusänderungen sein.

Berücksichtigt man den Beitrag der Deformationsänderung an der Radiusänderung, so bleibt immer noch eine Differenz von durchschnittlich 0.040 fm² pro Isotopenpaar übrig (siehe Tab. 2 und Abb. 5). Dies wirft die Frage auf, ob auch im Fall der Xe-Isotope diese Restdiskrepanz durch eine Hautdickenänderung erklärt werden kann, wie dies im Fall der Kr- /7/ und Cd-Isotope /12/ möglich war.

Nach Gerhardt et al. /7/ (siehe auch Gl. 3-51) läßt sich unter Berücksichtigung einer Hautdickenänderung folgender Ausdruck für die Kernladungsradiusänderungen ableiten:

$$\delta\langle r^2\rangle^{A,A'} = \frac{3}{5}\left(C_A^2 - C_{A'}^2\right) + \frac{3}{4\pi} C_{\bar{A}}^2 \,\delta\langle\beta^2\rangle^{A,A'} + \frac{14\pi^2}{5} a_{\bar{A}}^2 \left(\frac{\delta a}{a}\right)^{A,A'}$$

mit C = Halbwertsradius der Fermi II-Funktion nach Myers

$A > A'$

$\bar{A} = 1/2(A + A')$

a = Parameter, proportional zur Hautdicke $t = a\ln 3$

$a_{\bar{A}} = 0.585(48)$ fm

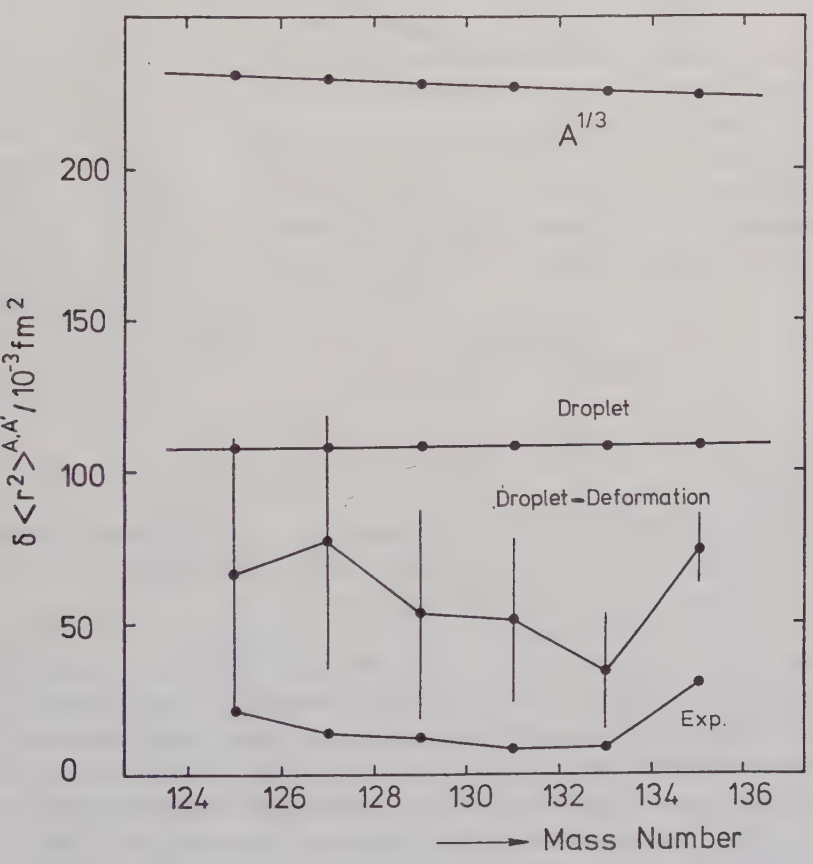

Abb. 5 Vergleich experimenteller Kernladungsradiusänderungen mit Berechnungen nach verschiedenen Modellen

Paar $A;A'$	$\delta\langle r^2\rangle^{A,A'}_{exp}$	$\frac{3}{5}\delta\langle C^2\rangle^{A,A'}$	$\frac{3}{4\pi}C_A^2\,\delta\langle\beta^2\rangle^{A,A'}$	$\delta\langle r^2\rangle^{A,A'}_{exp}-\delta\langle r^2\rangle^{A,A'}_{SHAPE}$	$\left(\frac{\delta a}{a}\right)^{A,A'}$ (%)
136,134	30.4	108.6	- 34(11)	-44(12)	-0.5(1)
134,132	8.9	108.3	- 74(19)	-25(20)	-0.3(2)
132,130	8.5	108.2	- 57(26)	-43(27)	-0.5(3)
130,128	12.3	107.9	- 55(34)	-41(35)	-0.4(4)
128,126	13.8	107.7	- 31(41)	-63(42)	-0.8(4)
126,124	21.6	107.7	- 42(45)	-44(46)	-0.5(5)

Tab. 2 Zusammenstellung aller Beiträge zur Kernladungsradiusänderung nach Gl. (3-51). Alle Radiusänderungen sind in 10^{-3} fm² angegeben.

In Reihe 5 von Tab. 2 sind die verbleibenden Differenzbeträge zwischen experimentellen und gerechneten Daten aufgeführt. Sie könnten durch die in Reihe 6 eingetragenen Hautdickenänderungen (angegeben in %) kompensiert werden. Wegen der großen Ungenauigkeiten der Deformationswerte und des spezifischen Masseneffekts kann jedoch eine Hautdickenänderung nicht eindeutig nachgewiesen werden. Eine Übereinstimmung zwischen den experimentellen und den berechneten Radiusänderungen einschließlich der Deformation kann bereits durch eine entsprechende Wahl des SME oder von $\Delta|\psi(0)|^2_{467.1\ nm}$ erreicht werden. Beim Xenon kann ein Hautdickeneinfluß daher nicht eindeutig gezeigt werden.

10.4 ZUSAMMENHANG ZWISCHEN KERNLADUNGSRADIEN UND BINDUNGSENERGIE PRO NUKLEON

Aufbauend auf den Untersuchungen von Duckworth /13/ gelangte Gerstenkorn über empirische Vergleiche der Bindungsenergie pro Nukleon mit mittleren quadratischen Kernladungsradien zu dem qualitativen Postulat, daß in der näheren Umgebung abgeschlossener Neutronenschalen eine Kernradiuszunahme linear mit der Abnahme der Bindungsenergie pro Nukleon verbunden ist. Die Änderungen der Kernladungsradien lassen sich also wie folgt darstellen:

$$\delta\langle r^2\rangle^{A,A'} = -K_1 \Delta\left(\frac{B}{A}\right)^{A,A'} + K_2$$

Durch genaue (Fehler < 1 MHz) ISV-Daten an einer langen Reihe von Xe- und Ba-Isotopen konnte eine solche lineare Beziehung insbesondere auch unterhalb der magischen Neutronenzahl N = 82 festgestellt werden /4/.

Mittlerweile stehen in der Literatur eine erhöhte Anzahl von Elementen zur Verfügung, an denen eine größere Anzahl von Isotopenpaaren mit großer Genauigkeit vermessen wurde. Diesem Umstand ist es zu verdanken, daß nun die Überprüfung der Gerstenkornschen Relation auch in andere Massenbereiche ausgedehnt werden kann.

Obwohl solche Untersuchungen keine mikroskopischen Erklärungen des Verhaltens von Kernradien ermöglichen, gestatten sie dennoch Vorhersagen von in der ISV-Untersuchung wichtigen Größen, wie ISV-Werte, SME-Werte (siehe Kapitel 7.8) und Deformationsänderungen.

10.4.1. Elemente des mittelschweren Massenbereichs: Xe,Cs,Ba

Für die Elemente Ba /6,17/ und Cs /5/ stehen genaue ISV-Daten für 13 bzw. 14 aufeinanderfolgende Isotope mit gerader Neutronenzahl zur Verfügung. An diesen beiden Elementen kann daher der Verlauf der ISV als Funktion der Änderung der Bindungsenergie pro Nukleon weit vor und nach Abschluß der $h_{11/2}$-Neutronenschale verfolgt werden. Abb. 6 zeigt den Verlauf der korrigierten experimentellen ISV in Abhängigkeit von $\Delta\,(B/A)^{A,A'}$. Verblüffend ist die große Ähnlichkeit der Diagramme für Cs und Ba sowie, soweit vergleichbar, auch für Xe.

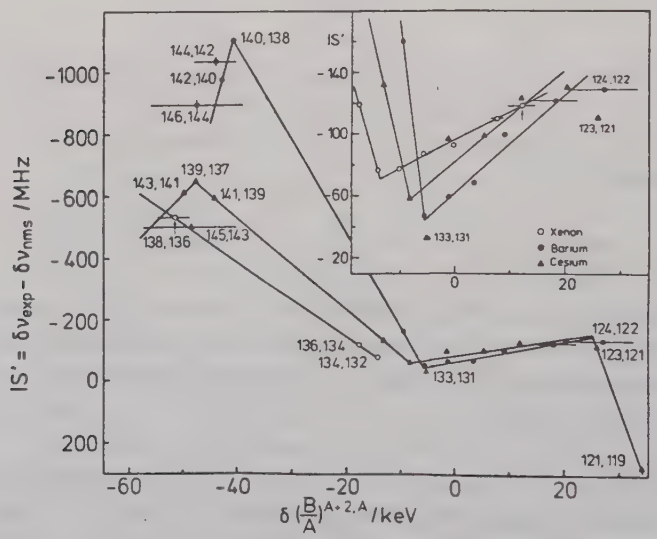

Abb. 6 Verlauf der reduzierten Isotopieverschiebung IS' in Abhängigkeit von der Änderung der Bindungsenergie pro Nukleon für Xe, Cs und Ba

Vier unterschiedliche Bereiche sind in Abb. 6 beim Cs und Ba feststellbar. Mangels Isotopenpaaren sind beim Xe nur zwei Bereiche erkennbar.

1. Die Punkte der Isotope mit den Neutronenpaaren (84,82), (82,80) und (80,78) liegen trotz kleiner Fehlergrenzen, entsprechend der Vorhersage von Gerstenkorn /3/, auf einer Geraden.
2. Die Punkte für die Neutronenpaare (80,78), (78,76), (76,74), (74,72), (72,70) und (70,68) liegen entsprechend der Hypothese von Wenz et al. /4/ ebenfalls annähernd auf einer Geraden. Zum Teil liegen die Punkte jedoch außerhalb der Fehlergrenzen der ISV-Daten.
3. Beim Cs eröffnen die Neutronenpaare (68,66) und (66,64) einen neuen Bereich.
4. Beim Cs und Ba liegen die Werte für die IS' der Neutronenpaare (84,82), (86,84), (88,86) und (90,88) im Rahmen der hier größeren Fehler der Bindungsenergie auf einer Geraden.

Die Abweichungen der IS' von den Ausgleichsgeraden in Abb. 6 betragen maximal 10 % . Große Abweichungen sind stets auch mit großen Deformationsänderungen verbunden. Wie beim Droplet-Modell scheint diese Art der ISV-Beschreibung Deformationseinflüsse und sicher auch ein Odd-Even-Staggering nicht automatisch zu beinhalten.

Unter der Annahme eines ähnlichen Verhaltens der Elemente Xe ,Cs , Ba gestattet Abb. 6 vier interessante quantitative Aussagen:

1. Wegen der großen Ähnlichkeit der Diagramme in Abb. 6 und deren linearem Verlauf kann man die ISV für die Isotopenpaare ^{138,136}Xe und ^{124,122}Xe durch lineare Extrapolation vorhersagen, da gleichzeitig entsprechende Bindungsenergiewerte vorliegen. Als numerische Werte erhält man für die experimentelle ISV (NME+SME+VE):

$^{138,136}Xe$ (467 nm) = - 470(50) MHz und

$^{124,122}Xe$ (467 nm) = - 72(6) MHz .

Eine genaue Vorhersage der ISV kann für ISV-Messungen an den kurzlebigen Isotopen ^{138}Xe ($T_{1/2}$= 17 m) und ^{122}Xe ($T_{1/2}$=20 h) von ausschlaggebendem Wert sein, da dann gezielt nach den Signalen dieser Isotope gesucht bzw. der Frequenzmittelungsbereich des Laserspektrometers stark eingeschränkt werden kann. Außerdem werden eventuelle Linienüberlappungen vorhersehbar und können durch geeignete Wahl des optischen Übergangs vermieden werden.

2. Entsprechend dem Vorgehen bei der Bestimmung des SME für die Xe-Isotope im Kap. 7.8 kann der SME für den Cs-Übergang bei 852 nm ermittelt werden. Angenommen werden muß, daß k_2 in Gl. 7-8 für Ba, Xe und Cs in erster Näherung konstant ist.

Mit $a_{Cs} = (k_2 + SME)_{Cs} = -82$ MHz und $k_2 = -39$MHz
erhält man

SME : $^{137,135}Cs_{852\ nm}$ = - 43 MHz .

Nimmt man an, daß

$$\delta\langle r^2\rangle^{138,136}_{Xe} \approx \delta\langle r^2\rangle^{139,137}_{Cs} \approx \delta\langle r^2\rangle^{140,138}_{Ba}$$

und außerdem der SME im Vergleich zu IS' für diese Isotopen-

paare vernachlässigbar ist, d.h. IS' $\approx$ VE, so kann man mit Hilfe von Abb. 6 die folgenden Verhältnisse für die Elemente A und B bilden:

$$\frac{(\Delta\nu_{EXP} - \Delta\nu_{NME})_A}{(\Delta\nu_{EXP} - \Delta\nu_{NME})_B} \approx \frac{F_A}{F_B}$$

Man kann so überprüfen, ob die berechneten F-Faktoren der Elemente in den untersuchten Übergängen miteinander konsistent sind, oder man kann diese Verhältnisfaktoren zur Berechnung der F-Faktoren selbst heranziehen und somit einen Beitrag zur genauen Festlegung von F-Faktoren liefern.
Aus Abb. 6 erhält man:

$$F_{Ba}/F_{Xe} = 2.08(11)$$

$$F_{Cs}/F_{Xe} = 1.23(7)$$

$$F_{Ba}/F_{Cs} = 1,70(4) \quad .$$

Mit den Werten
$F_{Xe} = -2062(90)$ MHz/fm^2 und $F_{Cs}/5/ = -2313$ MHz/fm^2

erhält man zwei Werte:

$$F_{Ba}(Xe) = -4289(424) \text{ MHz/fm}^2$$

$$F_{Ba}(Cs) = -3929(100) \text{ MHz/fm}^2 \quad /6/ \quad .$$

Alle Werte stimmen im Rahmen der Fehlergrenzen überein. Als Mittelwert ergibt sich

$$F_{Ba} = -4035(127) \text{ MHz/fm}^2 \quad .$$

4. Die ISV des Paars ^{121,119}Cs entsprechend dem Neutronen-

paar (66,64) ist positiv, d.h. $\langle r^2 \rangle_{Cs}^{121} < \langle r^2 \rangle_{Cs}^{119}$.

Entsprechende Verhältnisse für Ba und Xe vorausgesetzt, bedeutet dies, daß die Signale für Isotope mit $N < 64$ frequenzmäßig niedriger liegen werden als die Isotope mit größerem N und in einem Experiment unter Umständen zu Linienüberlappungen führen können.Erneut könnte eine möglichst genaue Vorhersage Komplikationen bei Messungen der ISV vermeiden helfen. Da N = 64 eine halbmagische Zahl ist, ist diese Vorhersage auch unter diesem Aspekt interessant.

10.4.2 Elemente des schweren Massenbereichs: Hg und Pb

Abb. 7 zeigt ein Diagramm, erstellt unter Verwendung von Hg-ISV-Daten aus dieser Arbeit und mit neuen Pb-ISV-Daten von Thompson et al. Die lineare Relation nach Gerstenkorn ist auch mit den jetzt genaueren Daten im Rahmen der Meßfehler vollkommen bestätigt. Eine Linearität, die sich auf Neutronenpaare unterhalb der magischen Neutronenzahl N = 126 bezieht, ist im Rahmen der Meßfehler nicht so gut erfüllt wie die Gerstenkornsche Beziehung. Abweichungen für den Bereich unterhalb der magischen Neutronenzahl wurden jedoch auch beim Xe, Ba und insbesondere beim Cs beobachtet und dort abrupten Deformationsänderungen zugeschrieben.
Durch die hier geringere Anzahl der Punkte wird zudem die Überprüfung der $\delta(\frac{\beta}{4})$-Relation schwieriger als bei den Xe- und Ba-Isotopen. Es erscheint jedoch möglich, aufgrund der Gerstenkornschen Relation die ISV für das erste Paar nach dem Schalenabschluß (^{208,206}Hg) vorherzusagen, sobald der Wert für ^{206,204}Hg bekannt ist.

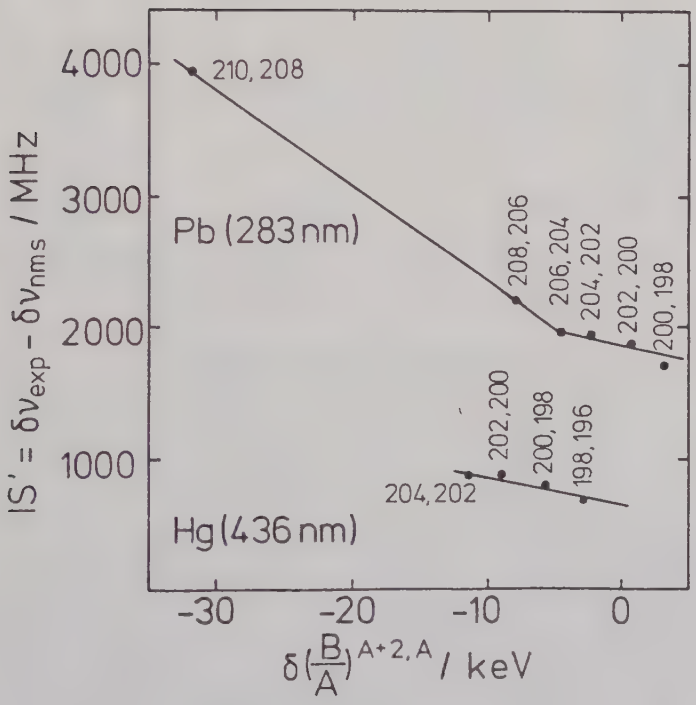

Abb. 7 Bindungsenergie-Plot mit Hg-ISV-Daten und Pb-ISV-Daten nach Ref. /15/

10.5 ISOTONISCHE VERGLEICHE VON ISOTOPIEVERSCHIEBUNGEN

Der auf dem isotonischen Vergleich von ISV-Daten beruhende sogenannte Isotonische Plot wurde im Kapitel 7.7 bei den Elementen Xenon und Barium zur Bestimmung des SME in optischen Xe-Übergängen angewandt.
In diesem Kapitel soll untersucht werden, ob und wieweit der Isotonische Plot bei anderen Elementen, bzw. in anderen Massenbereichen Anwendung finden kann.

10.5.1 Xe, Cs und Ba

Abb. 8, 9 und 10 zeigen Isotonische Plots der Elementepaare Ba-Xe, Ba-Cs und Xe-Cs.

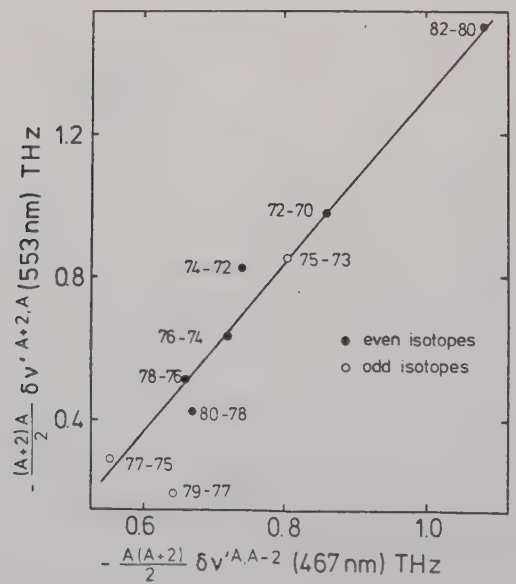

Abb. 8 Isotonischer Plot mit Ba-/6/und Xe-ISV-Daten

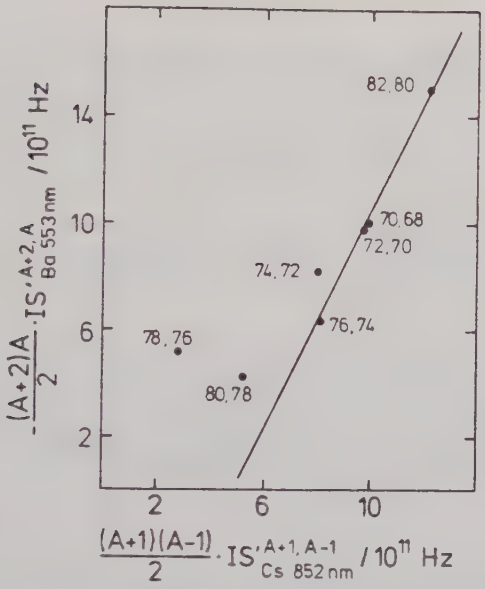

Abb. 9 Isotonischer Plot mit Ba-Cs-ISV-Daten

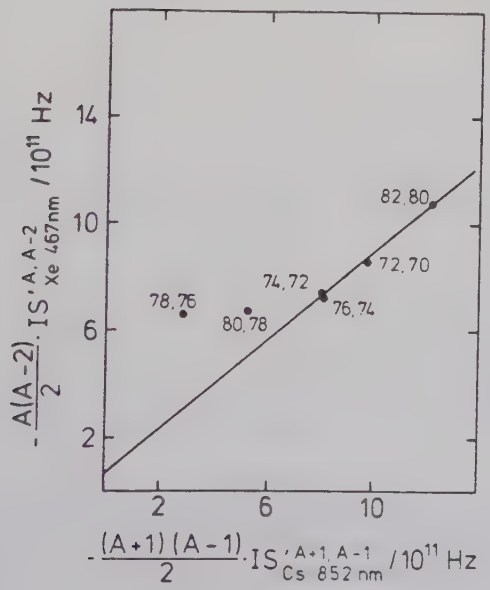

Abb. 10 Isotonischer Plot mit Xe-Cs-ISV-Daten

Anhand der Abbildungen sind folgende Aussagen möglich:

1. Die Punkte in Abb. 8 lassen sich durch eine Gerade beschreiben, d.h. der Isotonische Plot "funktioniert" im Prinzip. Die Abweichungen von der nach Gl. (7-5) erwarteten perfekten linearen Relation zwischen den ISV-Daten werden jedoch sichtbar, sobald die Genauigkeit der ISV-Daten besser als 3 bis 5 MHz ist.

2. Die Anwendung des Isotonischen Plots auf Elemente, deren Isotone jeweils (g,g)-Kerne haben (z.B. Ba-Xe), zeigen eine wesentlich ausgeprägtere lineare Relation, als dies bei Kernen mit ungerader Nukleonenzahl zu beobachten ist.

Was ist der Grund für die Abweichung der Punkte von den Ausgleichsgeraden in den Abbildungen 8 bis 10? Wird sie etwa durch den Einfluß der von Element zu Element und von Isotop zu Isotop unterschiedlichen Deformationsänderungen verursacht?

Neutronen-paar	$\Delta\langle\beta^2\rangle^{1/2}_{Ba}\times10^3$	$\Delta\langle\beta^2\rangle^{1/2}_{Xe}\times10^3$	$\Delta\langle\beta^2\rangle^{1/2}_{Cs}\times10^3$
82,80	- 35(4)	- 21(7)	--------
80,78	- 35(4)	- 34(9)	- 47(18)
78,76	- 10(10)	- 22(10)	- 45(22)
76,74	- 60(20)	- 18(11)	- 15(27)
74,72	- 30(40)	- 9(13)	- 17(35)
72,70	- 30(45)	- 13(14)	--------
Ref.	/6/	diese Arbeit	/16/

Tab. 3 Deformationsänderungen isotoner Ba-, Xe- und Cs-Isotopenpaare unterhalb von N = 82

Zur Klärung dieser Frage werden in Tab. 3 die Deformationsänderungen $\delta \langle \beta^2 \rangle^{1/2}$ zwischen isotonen Paaren der Elemente Ba, Xe und Cs einander gegenübergestellt und in Abb. 11 graphisch dargestellt.

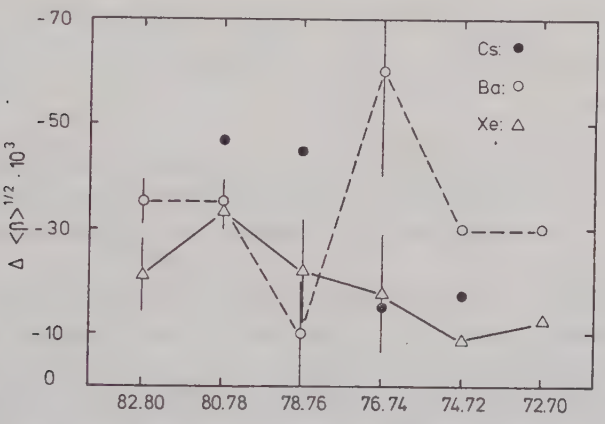

Abb. 11 Graphische Darstellung der Deformationsänderungen für die Ba-, Xe- und Cs-Isotone

Betrachtet man die Elemente-Kombination Ba-Xe, so sind in Folge der großen Fehler der Deformationswerte verläßliche Aussagen über den Verlauf von $\delta \langle \beta^2 \rangle^{1/2}$ nur bei drei Isotonen-Paaren möglich.
Insgesamt betrachtet, scheinen die $\delta \langle \beta^2 \rangle^{1/2}$ -Werte um etwa 0.015 kleiner zu sein als die entsprechenden Werte für die Xe-Isotope. Jedoch würde ein konstant kleinerer Wert von $\delta \langle \beta^2 \rangle^{1/2}$ keinen Einfluß der Deformationsänderungen auf den Isotonischen Plot verursachen.

Insbesondere für das Neutronenpaar (80,78) und im geringeren Maße auch für das Paar (74,72) weicht die Differenz $\delta \langle \beta^2 \rangle^{1/2}$ $- \delta \langle \beta^2 \rangle^{1/2}$ vom Mittelwert ab. An diesen Punkten treten auch

im Isotonischen Plot Abweichungen von der Ausgleichsgeraden auf. Unklar ist in diesem Zusammenhang jedoch das Verhalten der Ba-Paare (78,76) und (76,74) in Abb. 11. Die stark unterschiedlichen $\delta\langle\beta^2\rangle^{1/2}$ - Werte deuten auf einen Fehler der Deformationswerte hin (Deformationwert für ^{134}Ba in /6/ besitzt keine Fehlerangabe). Der Isotonische Plot selbst gibt keinen Hinweis auf eine derartig große Deformationsänderung durch eine eventuelle große Abweichung von der Geraden.

Vergleicht man in gleicher Weise die Elemente-Paare Ba-Cs und Xe-Cs, so ist aufgrund der großen Deformationsfehler und der hier geringeren Anzahl der Punkte nur eine schwache Aussage möglich.
Man sollte erwarten dürfen, daß $\delta\langle\beta^2\rangle^{1/2}$ in etwa zwischen den entsprechenden Ba- und Xe-Werten liegt. Das Cs-Paar (80,78) und insbesondere das Paar (78,76) zeigen jedoch ein entgegengesetztes Verhalten. Es sind dies auch die Punkte, die in Abb. 9 und Abb. 10 besonders schlecht zu den Ausgleichsgeraden passen und daher als Deformationseinflüsse auf den Isotonischen Plot interpretiert werden müssen.

Als quantitatives Ergebnis kann aus Abb. 8 (Ba-Xe) durch Interpolation bzw. Extrapolation des Isotonischen Plots die unbekannte ISV_{exp} für die Isotopenpaare ^{124,122}Xe und ^{138,136}Xe entnommen werden, da ISV_{exp}-Daten für die Ba-Isotone bekannt sind. Man erhält:

^{124,122}Xe(467 nm) = - 70(5) MHz und

^{138,136}Xe(467 nm) = -415(30) MHz .

Ein Vergleich dieser Werte mit den Vorhersagen nach dem Bindungsenergie-Modell (siehe Kapitel 10.4) zeigt eine sehr gute bzw. befriedigende Übereinstimmung der ISV-Daten im Rahmen der Fehlergrenzen.

Abb. 12 zeigt einen Isotonischen Plot zwischen Ba /17/ und Cs /5/, der im Gegensatz zu Abb. 9 auch Isotone jenseits der magischen Neutronenzahl N = 82 beinhaltet.

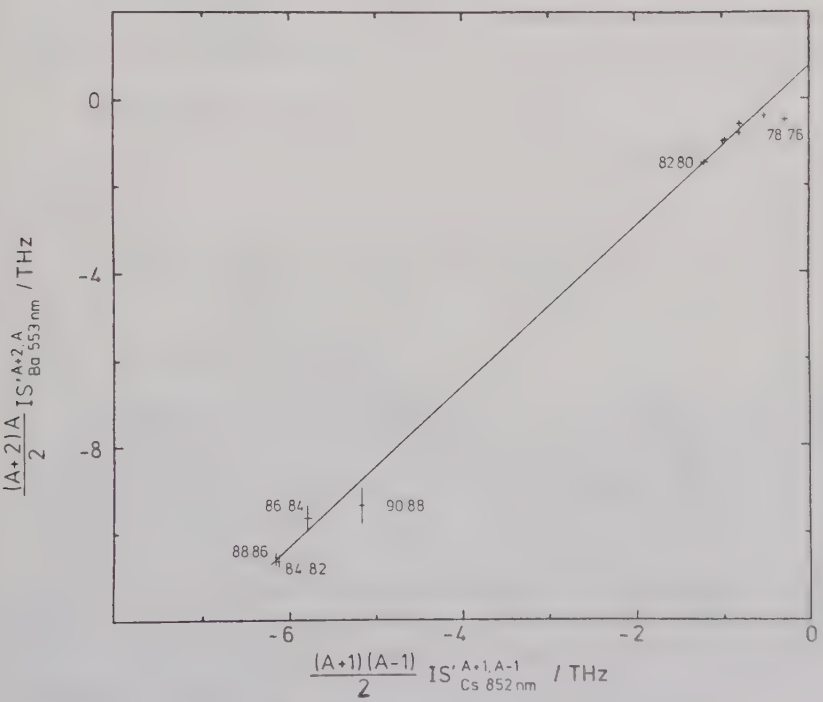

Abb. 12 Isotonischer Plot mit Ba-Cs-ISV-Daten nach Neugart et al. /17/ und Thibault et al. /5/

Mit Ausnahme des Neutronenpaars (78,76) zeigen alle übrigen Punkte einen gut linearen Zusammenhang und ermöglichen dadurch die Bestimmung des SME_{Cs} aus dem Achsenabschnitt (siehe Kapitel 7.7). Mit einem Achsenabschnitt b = 0.75(10) THz, einer Steigung m = 1.9(1) und einem SME_{Ba} = - 26(11) MHz erhält man:

$$SME\ ^{137,135}Cs_{852\ nm} = -56(13)\ MHz.$$

Dieses Ergebnis stimmt mit dem aus dem Bindungsenergie-Modell nach Wenz et al. /4/ abgeleiteten Wert von - 43 MHz im Rahmen der Fehlergrenzen überein.

10.5.2 Hg und Pb

Abb. 13 zeigt einen Isotonischen Plot im Bereich der schweren Elemente. Zusammen mit den in dieser Arbeit ge-

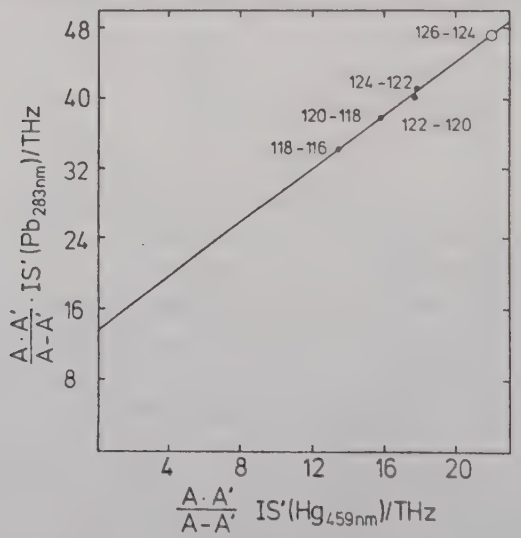

Abb. 13 Isotonischer Plot mit Hg- und Pb-ISV-Daten dieser Arbeit und nach Ref. /15/

wonnenen Hg-Daten und den Pb-ISV-Daten von Thompson et al. /15/ ist erstmals auch in diesem Massenbereich eine genaue Nachprüfung des Isotonischen Plots möglich.
Im Rahmen der durch die Pb-Daten vorgegebenen Fehler von 3 bis 6 MHz gelingt eine lineare Anpassung der Daten. Dies deckt sich mit den beim Barium und Xenon gewonnenen Erfahrungen.

Neben dem Nachweis der Gültigkeit für die Hg-Pb-Isotope kann man als quantitatives Ergebnis aus Abb. 13 die unbekannte ISV_{exp} für $^{206,204}Hg$ entnehmen. Man erhält:

$$^{206,204}Hg_{459\ nm} = 1060(20)\ MHz.$$

10.6 ODD-EVEN-STAGGERING

Das sogenannte Odd-Even-Staggering ist eine Eigenschaft der Kernladungsradien, die in verschiedenen Massenbereichen beobachtet wird, insbesondere jedoch unterhalb abgeschlossener Neutronenschalen.

Abb. 14 zeigt diesen Effekt am Beispiel der Elemente Barium, Cäsium und Xenon. Die mittleren quadratischen Ladungsradien der ungeraden Isotope sind kleiner als die der benachbarten geraden Isotope.

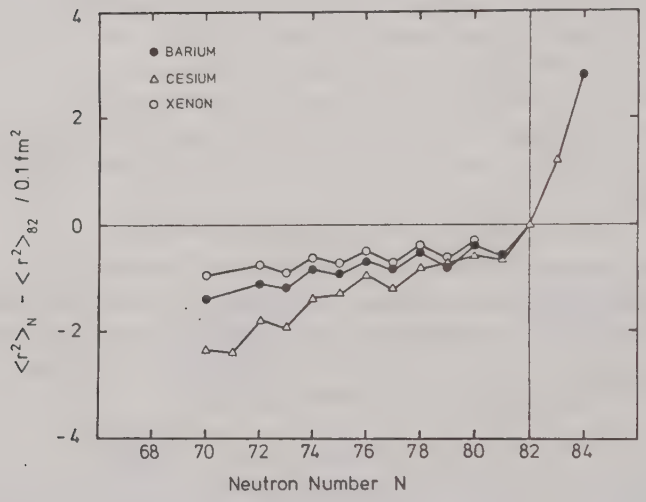

Abb. 14 Odd-Even-Staggering der Ba-, Cs- und Xe-Isotope unterhalb der magischen Neutronenzahl N = 82

Zur Beschreibung des Odd-Even-Staggering wird folgender Parameter γ_{stag} verwendet:

$$\gamma_{stag} = \frac{\langle r^2\rangle_{A+1} - \langle r^2\rangle_A}{\frac{1}{2}\left(\langle r^2\rangle_{A+2} - \langle r^2\rangle_A\right)} \quad , 1181$$

wobei A geradzahlig ist.

Tab. 4 zeigt eine Zusammenstellung der Staggering-Parameter für die in dieser Arbeit untersuchten Xenonisotope.

Neutronen-zahl	γ_{STAG} Xe	Cs	Ba
82,81,80	--------	- 0.29	- 0.88
80,79,78	- 5.17	- 0.77	- 4.33
78,77,76	- 4.94	- 3.29	- 2.13
76,75,74	- 1.95	- 0.48	- 0.78
74,73,72	- 2.46	- 0.68	- 0.56

Tab. 4 Staggering-Parameter γ von Xe-, Cs- und Ba-Isotonen

Beim Betrachten der Staggering-Parameter von Ba und Cs ist zu berücksichtigen, daß γ stark von der Wahl des SME abhängt, und die SME von Ba und Cs mehr oder weniger willkürlich Null gesetzt wurden. Dennoch sind sie sich im groben Verlauf ähnlich.

Die γ-Werte aller hier betrachteten Elemente sind negativ, da die Kernradien der ungeraden Isotope kleiner sind als die ihrer jeweils geraden Nachbarn.

Qualitativ kommt das Odd-Even-Staggering dadurch zustande, daß die mittleren quadratischen Deformationen für Kerne mit gerader Neutronenzahl größer sind als die für ungeradzahlige

Kerne. Dies wird durch einen Abschirmeffekt des ungeraden Neutrons auf weitreichende Grundzustands-Quadrupol-Korrelationen erklärt [19].
Die auf diesem Prinzip beruhende quantitative Beschreibung versagt allerdings. Bessere Ergebnisse erhält man unter Verwendung einer dichteabhängigen Kraft anstatt einer Paarungs-Quadrupol-Kraft zur Beschreibung des Staggering-Effekts [20]. Eine Beschreibung des Odd-Even-Staggerings nach dem oben skizzierten Ansatz wurde im Rahmen dieser Arbeit nicht vorgenommen.

Abb. 15 zeigt graphisch die Größe der Kernladungsradien aller hier untersuchten Xe-Isotope. Insbesondere die Isotope ^{133}Xe und ^{131}Xe sind wesentlich kleiner, als man aufgrund der Massenzahl erwarten würde.

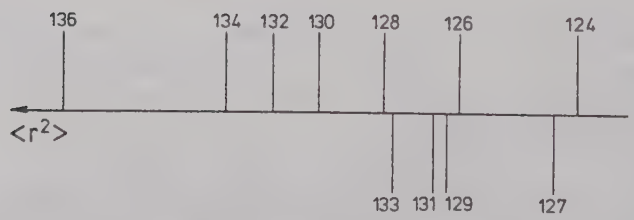

Abb. 15 Kernladungsradien der geraden Xe-Isotope im Vergleich zu den Xe-Isotopen mit ungerader Neutronenzahl

REFERENZEN

/1/ L.R.B. Elton: Nuclear Sizes, Oxford Univ. Press, London (1961)

/2/ W.D. Myers: Droplet Model of Atomic Nuclei , IFI/Plenum New York (1971)

/3/ S. Gerstenkorn: C.R. Acad.Sc.Paris, Tome 268, Serie B, 1636 (1969)

/4/ R. Wenz, E. Matthias, H. Rinneberg, F. Schneider: Z.Physik **A 295**, 303 (1980)

/5/ C. Thibault, F. Touchard, S. Büttgenbach, R. Klapisch, M. de Saint Simon, H.T. Duong, P. Jacquinot, P. Juncar, S. Liberman, P. Pillet, J. Pinard, J.L. Vialle, A. Pesnelle, G. Huber: Nucl.Phys. **A 367**, 1 (1981)

/6/ K. Bekk, A. Andl, S. Göring, A. Hanser, G. Nowicki, H. Rebel, G. Schatz: Z.Physik **A 291**, 219 (1979)

/7/ H. Gerhardt, E. Matthias, H. Rinneberg, F. Schneider, A. Timmermann, R. Wenz, P.J. West: Z.Physik **A 292**, 7 (1979)

/8/ C. Ekström, S. Ingelman, G. Wannberg, M. Skarestad: Nucl.Phys. **A 292**, 144 (1977)

/9/ D.C. Palmer, A.D. Irvins, P.D. Forsyth: J.Phys. G, 1143 (1978)

/10/ D.M. Gordon, L.S. Eytel, H. de Waard, D.E. Murnik: Phys.Rev. **12**, 628 (1975)

/11/ L.O. Edvardson, L.O. Norlin: Fizika **7**, 222 (1974) und UUIP 869 (1974)

/12/ R. Wenz, A. Timmermann, E. Matthias: Z.Physik **A 303**, 87 (1981)

/13/ H.L. Duckworth, C.L. Kegley, J.M. Olson, G.S. Stanford: Phys.Rev. **83**, 114 (1951)

/14/ W. Kunold, M. Schneider, L.M. Simons, J. Wüst, R. Abela: Z.Physik **A 312**, 11 (1983)

/15/ R.C. Thompson, M. Anselment, K. Bekk, S. Göring, A. Hanser, G. Meisel, H. Rebel, G. Schatz, B.A. Brown: KfK 3455 (1982)

/16/ S. Ullrich, E.W. Otten: Nucl.Phys. **A 248**, 173 (1975)

/17/ R. Neugart, F. Buchinger, W. Klempt, A.C. Mueller, E.W. Otten, C. Ekström, J. Heinemeier: Hyperfine Interactions **9**, 151 (1981)

/18/ P. Jacquinot, R. Klapisch: Rep.Prog.Phys. Vol **42**, 773 (1979)

/19/ B.S. Reehal, R.A. Soerensen: Nucl.Phys. **A 161**, 385 (1971)

/20/ J. Speth, W. Henning, P. Kienle, J. Meyer: Isomer Shifts and Nuclear Models, ed. G.K. Shenoy, F.W. Wagner, North Holland 1973

11. ZUSAMMENFASSUNG

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Laserspektrometer entwickelt, mit dem Frequenzen optischer Übergänge im Bereich von 400 nm bis 1000 nm mit einer Genauigkeit von besser als 1 MHz bestimmt werden können. Zusammen mit einer neu entwickelten Präparations- und Anregungstechnik konnten mit sättigungsspektroskopischen Methoden die ISV aller stabilen Xe-Isotope sowie zweier radioaktiver Isotope auf besser als 500 kHz bestimmt werden.

Die hohe Frequenzgenauigkeit zusammen mit der Fähigkeit, Spektren frequenzsynchron zu speichern und zu mitteln, machen dieses Laserspektrometer auch zum idealen Instrument für die Untersuchung von Linienprofilen und die Messung von Druckverbreiterungs- und Druckverschiebungseffekten in optischen Spektrallinien.

Als Ergebnis dieser Arbeit stehen jetzt die genauesten ISV-Daten der Elemente Xenon und Quecksilber in mehreren optischen Übergängen zur Verfügung. Damit konnte bei dem radioaktiven Xe-Isotop ^{127}Xe erstmals das magnetische Moment zu $\mu = -0.5039(2)$ n.m. berechnet werden. Beim ^{133}Xe konnten erneut und mit einer um eine Größenordnung höheren Genauigkeit die Momente zu $\mu = +0.8125(3)$ n.m. und $Q = +0.145(14)$ b bestimmt werden. Gleichzeitig wurde mit diesen Daten die Hyperfeinanomalie $^{129}\Delta^{131}$ auf Werte kleiner als $4*10^{-4}$ eingegrenzt.

Bei den Xe-Isotopen mit gerader Neutronenzahl konnten mit diesen sehr genauen ISV-Daten erstmals die Möglichkeiten und Grenzen des Isotonischen Plots und der Bindungsenergie-Relation zur Bestimmung des SME, der F_i-Faktoren und zum Nachweis von Kernschaleneffekten überprüft werden.

In allen hier untersuchten Fällen liefert der Isotonische Plot eine lineare Beziehung zwischen den ISV benachbarter Elemente. Die maximalen Abweichungen liegen im Bereich von 1 MHz bis maximal 8 MHz, wobei große Abweichungen immer mit unregelmäßigen Deformationsänderungen einhergehen.

Aus einem Ba-Xe-Plot wurde für den 467 nm-Übergang ein SME von -56(11) MHz bestimmt. Für den Cs-Übergang bei 852 nm wurde ein SME von -50(15) MHz ausgerechnet. Dieses Ergebnis ist besonders wichtig, da andere SME-Bestimmungsmethoden beim Element Cs nicht angewandt werden können.

Die SME-Vorhersagen für Xe und Cs aus der Bindungsenergie-Relation sind mit den Werten aus dem Isotonischen Plot kompatibel. Die Bindungsenergie-Relation zeigt insbesondere an den langen Ba- und Cs-Isotopenreihen deutlich ausgeprägte Schaleneffekte. Der prinzipiell ähnliche Verlauf ermöglicht ISV-Vorhersagen.

Die aus den Xe-ISV-Daten bestimmten Kernladungsradius-änderungen sind um eine Größenordnung kleiner als die nach dem $A^{1/3}$-Gesetz zu erwartenden Änderungen. Selbst die Berechnungen nach dem Droplet-Modell resultieren in zu großen $\delta\langle r^2\rangle$-Werten, die jedoch unter Berücksichtigung der Kerndeformation und durch Einbeziehung von Hautdicken-änderungen an die experimentellen Daten angepaßt werden können. Wie bei den Nachbarelementen Barium und Cäsium beobachtet man auch bei den Xe-Isotopen ein ausgeprägtes Odd-Even-Staggering.

Danksagung

Die vorliegende Arbeit wurde am Institut für Atom- und Festkörperphysik des Fachbereichs Physik der Freien Universität Berlin durchgeführt. Sie wurde im Rahmen des Sonderforschungsbereichs 161 "Hyperfeinwechselwirkung" von der Deutschen Forschungsgemeinschaft finanziell gefördert.

Herrn Prof. Dr. E. Matthias danke ich für die Aufnahme in seine Arbeitsgruppe und die stets großzügige finanzielle Ausstattung dieses Projektes, die die erfolgreiche Durchführung dieser Arbeit ermöglichte. Besonderen Dank schulde ich ihm für die geduldige Betreuung dieser Arbeit nach meinem Ausscheiden aus der Freien Universität Berlin.

Herrn Dr. P.J. West danke ich für seine Mithilfe bei der nicht immer ungefährlichen Präparation der radioaktiven Xenonisotope sowie für seine kontinuierliche Unterstützung bei der computergerechten Aufbereitung und Verarbeitung der Meßdaten.

Mein Dank gilt auch den Herren W. Makat, R. Wenz, Dr. G. Gerhardt und F. Jeschonnek, die durch ihre direkte Mitarbeit am Experiment oder bei der Analyse der Daten diese Arbeit wesentlich unterstützt haben.

Den Herren E. Arndt, J. Kremke und P. Staszak gilt mein Dank für die stets prompte und korrekte Planung und Ausführung aller mechanischen Arbeiten.

Herrn Harms, Glastechnische Werkstätten Berlin, danke ich für seinen weit über das Normale hinausgehenden glasbläserischen Einsatz bei der Konstruktion und Herstellung der Resonanzzellen.

Herzlichen Dank an Herrn Lemma für die photographischen Arbeiten und an Frau G. Sedatis und Frau Dell' Anna für die Anfertigung der zahlreichen Zeichnungen.

LEBENSLAUF

Name:	Franz Schneider
Geburtsdatum:	28. November 1946
Geburtsort:	Hilpoltstein/Bayern
1954 - 1958	Volksschule Wangen bei Göppingen/Baden-Württemberg
1958 - 1966	Freihof-Gymnasium Göppingen, Abitur
1967 - 1968	Wehrdienst
1969 - 1975	Physikstudium an der Karl-Rupprecht-Universität Heidelberg
1972	Diplomvorprüfung
1972 - 1975	Diplomarbeit: Penning-Stösse durch metastabiles Neon
8.7.1975	Diplomprüfung
1975 - 1976	Wiss. Mitarbeiter am Institut für Angewandte Physik der Universität Heidelberg. Thema: Spektroskopie am gepulsten Xenonionenlaser
1977 - 1981	Wiss. Assistent (AH1) am Institut für Atom- und Festkörperphysik der Freien Universität Berlin
Seit Feb. 1982	Verkauf und Anwendungsberatung im Bereich wissenschaftlicher und industrieller Lasersysteme bei SPECTRA-PHYSICS GmbH, Darmstadt

Druck und Verarbeitung: copy shop, darmstadt, tel. 21353